

日本結晶 学会誌



巻頭言

渡辺得之助……………1

総合報告]

結晶構造解析と電子計算機

細谷資明……………2

三次元顕微鏡

砂川一郎……………14

トピックス]

国際フィルム試験報告

森本英武……………29

ang カメラに就いて

加藤範夫……………33

1

〔談話室〕

学会の思い出	森 本 信 男.....37
物性研究所の紹介	三 宅 静 雄.....39

〔新製品紹介〕

X線マイクロアナライザー（日立製作所）	42
---------------------------	----

〔新刊書〕

World Directory of Crystallographers (I. U. Cr.)	三 宅 静 雄.....43
電子顕微鏡の理論と応用(III)理工学への応用 （電子顕微鏡学会編）	高 橋 浩.....43
ニュース.....	45
会 報.....	46

日本結晶学会誌編集委員

委員長	三 宅 静 雄				
委 員	小 川 四 郎	柿 木 二 郎	飼 沼 芳 郎	久 保 輝 一 郎	
	斉 藤 喜 彦(幹)	高 木 佐 知 夫	竹 内 慶 夫(幹)	中 平 光 興	
	橋 本 初 次 郎	吉 田 鋤	渡 辺 得 之 助(幹)		

直 観 と 論 理

渡 辺 得 之 助*

Pauling が第 13 回国際純正及び応用化学会議の開会式につづいて行った講演で次のように述べている。“一般の人々は科学者はすぐれた知性を働かせて既知の事実から新らしい一般原理を論理的に帰納し又は既知の原理から未だ知られていなかった結論を論理的に演繹すると考えている。このような方法は、もちろん、用いられているが、それによってもたらされる知識の進歩は、それと別種の精神の働きによってもたらされるものにくらべて重要性は少い”。この講演は論理を越えた洞察力或は直観と呼ばれるものがどのように重要であるかを彼自身の経験について述べたものである。

Pittsburgh 大学の塩野良之助君は結晶解析に関する多くのプログラムを作製しそのプログラムは多くの人々に用いられている。彼の書いたプログラムは理解し易いと云うことが定評のようである。同君が嘗て Jeffrey 教授から、いろいろのプログラムが作製されているが作製した人以外には理解しにくいものが多い。それで誰にでも理解できるプログラムの作製とその説明を書くことを命ぜられていると語られたことがある。われわれの研究室でも半年許りプログラムの勉強をつづけているが、未だに作製したプログラムが計算機にかからない場合が屢々ある。1,000 程度のステップの中ただ 1 つの誤があっても計算機は働かない。プログラムの誤を発見するプログラムもあるが、こみ入った論理を正しくたどることのむづかしさをつくづくと感じず。

このように考えてくると論理の力は努力によって養われるように思われる。それでは直観は与えられた才能であろうか、始めに述べた Pauling の講演は Poincaré の次の言葉でつけられる。“創造的な数学者をつくるものは、数学や論理則の知識のみでなく、むしろ既知の数学的実体の間の無数の組合せ——その大部分は興味のないものであるが——の中から真に有用で価値ある組合せをえらびだす直観の力である”。

西川正治先生が結晶構造解析に空間群理論を思いつかれたのも、又、近くは Perutz や Kendrew が球状蛋白質の構造解析に重原子置換を思いついたのも直観と云うことができようか。直観とは結局、記憶の中にある正確な知識の間の相関々係——それは論理的には強く結びついていないように見えるかも知れない——に思い到ることではなからうか。そのためには見かけは全く関係のなさそうな他の分野で行われている重要な研究を理解することも必要と思われる。本誌がそのような役割を果すことを祈ってやまない。

* 大阪大学理学部

〔綜合報告〕

結晶構造解析と電子計算機

細 谷 資 明*

§ 1. ま え が き

最近電子計算機の発達が目覚ましく、結晶構造解析の分野においてもその利用度は年々増加し¹⁾、量的にも質的にも電子計算機の利用なしでは考えられないような仕事も出て来るようになってきた。我国では電子計算機の製作が米国英国などに比し立ちおくれたとはいえ、最近輸入機国産機ともに種類も台数も増えつつある²⁾。特に 1958 年に東大理学部高橋研究室で完成された PC-1 は大学関係の研究者にとって比較的自由に使えるようになった最初の計算機であったといえよう。これを用いて多方面の計算がなされたが、結晶解析の分野では飯高、桜井両氏等がほとんどすべての基本的な計算を行なった^{3,4)}。その他大阪大学の研究者は UNIVAC 120, Bendix G 15 D, NEAC 2201 などを主として利用してきた⁵⁾、PC-1 は記憶容量が少ない上、入出力の設備が不満足であったけれども、第 1 段階として貴重な経験を与えてくれたといえよう。近く物性研究所に PC-2 が設置され全国的に利用されようとしているが、その性能は PC-1 に比べて飛躍的に向上し IBM 704 に迫るものと期待されている。また他の大学、研究所、会社等においても続々と中型機大型機が設計製造され、中には 704 を凌ぐことを目標にしているものもある。こういう時に当って構造解析に対する電子計算機の応用を展望しておくことは大いに必要と思われる。

一体計算機に限らないが、こうした機械は一度出来上って暫くすると、その性能一杯の仕事が必ず計画実行されるようになるものである。そして計算機の場合、その性能つまり速度と記憶容量に応じてかなり計算のやり方が違って来るものと思われる。本稿では特定の計算機を念頭におかないで、一般的な紹介ないし考察を行ないたいと思う。

また話題は主として単結晶の構造解析に限定することをお断りしておく。

§ 2. 通常の計算の能率化

電子計算機が普及し始めた第 1 段階では当然今迄卓上計算機或はリレー式計算機で行なわれていた通常の計算がそのままとり上げられ、飛躍的に能率化した。こういう種類の計算の代表的なものを並べてみると次のようになるであろう。

- (1) 原子散乱因子の計算
- (2) Lorentz factor および polarization factor の補正
- (3) 吸収の補正
- (4) 消衰効果の補正
- (5) Bragg 角 θ または $(\sin \theta / \lambda)^2$ の表の作成

* 東京大学物性研究所

- (6) 温度因子とスケール因子の決定 (Wilson plot)
- (7) 対称中心の有無の統計的判定
- (8) 異常分散の補正
- (9) Patterson 合成 (Sharpening を含む)
- (10) 結晶構造因子 F からユニタリー構造因子 U を求める計算
- (11) 符号ないし位相の決定
- (12) 同形置換法に伴う計算
- (13) Buerger の minimum function の方法
- (14) 分子構造因子の計算
- (15) 結晶構造因子の計算
- (16) Scaling factor, reliability factor R , 標準偏差等の計算
- (17) フーリエ合成 (D 合成も含む)
- (18) 最小自乗法による精密化
- (19) 原子間距離, 結合角などの計算

上記の他色々あると思われるが, 以上のうちで多少問題になる点について述べてみたい。

(1) 原子散乱因子の値は表として与えておいて各反射の $(\sin \theta / \lambda)$ の値に応じて内挿によって求める場合と解析的表現を与えて計算する場合が考えられる。前者は精度の点で有利であり, また各研究者の特殊な希望にも応じ易いが記憶容量の点で不利と思われる。後者のうち代表的なものは Pepinsky 等⁶⁾のもので,

$$f(x) = A \exp(-ax^2) + B \exp(-bx^2) + C$$

の形を用いる。ただし, $x = \sin \theta$ で, 定数 C は $\text{CuK}\alpha$ の範囲では 0, $\text{MoK}\alpha$ の範囲では有限な値を用いる。何れにせよ $x=0$ において f が電子数に等しくなるようにきめているが, Forsyth 等⁷⁾ は上式の x の代りに $s = \sin \theta / \lambda$ を用い, $s=0.5$ で正しい値に合わせたものを提唱している。この形は 異常分散の補正を C に含ませうる点で便利であろう⁸⁾。また Freeman 等⁹⁾ は多項式近似を用いているが, これは

$$f(s') = a_0 + s'(a_1 + s'(a_2 + \dots + s'(a_n) \dots)) \quad (s' = \sin \theta / 2\lambda)$$

のように計算機向きの形に書けるため速度の点で有利である。6 次までとって $\text{CuK}\alpha$ の範囲で 1% 以下の誤差となっている。さらにまた別の形

$$f(s) = \exp(\sum \alpha_n s^n)$$

も提唱されていて¹⁰⁾, これは温度因子の変更が α_2 だけで行える点が便利である。これらは何れも大差ないと思われるが計算機の容量などに余裕がない場合は選択を迫られることもありうる。

(2) のいわゆる $(pL)^{-1}$ の補正はワイセンベルグカメラの場合¹¹⁾ とプリセッションカメラの場合を考えておけば十分と思われる。

(3) 吸収の補正は任意の形の結晶に対して, Albrecht¹²⁾ の方法や Howells¹³⁾ のものがある。前者の方法はグラフ的に行なう計算によって実際に用いられてきた^{14, 15, 16)} もので計算機にやらせるにも比較的便利であり, そういう試みもある^{17, 18)}。

(6) Wilson plot を行なうときの点のちらばりは最小自乗法で直線を引く程 at random とはいえないから, もっと簡便迅速な方法で十分と思われる¹⁹⁾。構造解析が終わってから例えばベンゼン環に対する best fit plane を求めるときにも類似のことが言える¹⁹⁾。

(7) 対称中心の有無の判定は Wilson の最初の論文²⁰⁾ のように 1 つの数値だけで行なうと

重原子の影響などで不安であるから、Howells 等²¹⁾の方法が普通用いられている。これを計算機にやらせるとき、2つの理論曲線からの外れをどのような形で現わすのが迅速かつ明瞭であるかを考える必要がある。重原子の含まれている場合の研究も沢山あるが、例えば最近の Srinivasan による方法²²⁾などは計算機で判定させるのに便利と思われる。

(9) Patterson 合成も計算機を使うと3次元でも非常に楽になるが、普通の密度分布を求めたのでは印刷に時間がかかるだけでなく、結果が非常に扱い難いと思われる。従って或る値以上の高さの山だけ探させるとか、求める切口を簡単に指定してそこだけ計算させるとか、原点の周囲で求める原子間距離に相当する山を探してその高さや座標だけを印刷させるといった風の使い方が必要になるものと思われる。

最近の Lipscomb 等の研究²³⁾では、普通の Patterson 関数 $P(u)$ の中の電子密度分布 ρ の代りに $\nabla\rho$ を用いた derivative function $Q(u)$ を用いている。直ぐ分るように $Q(u)$ だけでは必要な山が鋭くなるに伴って周囲に邪魔な谷が現われる。それを $AP(u)+BQ(u)$ (A と B は適当な比をもつ定数) のような1次結合を作って谷を消して、必要な山だけ残すと非常に良好な sharpening ができるという方法である。sharpening にはこの他 Cowley²⁴⁾が考えたように $|F|$ を $|F|^2$ で展開して用いる方法もある。計算機を使えば計算の労力は余り問題にならないから今後とも色々の工夫が考え出され実行されるであろう。いうまでもなく image-seeking 法にとって真の山の分離をできるだけよくすることは構造が複雑になる程、益々大切になる。

(ii)の項については§4で述べる。

(13) minimum function の方法は(9)の項に続くわけであって、trial structure をうるのに強力なものである。構造をとくという意味では§4に入れてもよいのであるが、ここでは Lipscomb 等²⁵⁾の経験に一寸ふれておこう。単位胞の大きさにもよるが、3次元でやった例では64000語位の記憶容量を要するので当分は磁気テープを必要とし、時間も相当かかるものと思われる。

(14)これは Lipson の光学的なフーリエ変換の方法に対応するものであって、計算機で行えば簡単に投影面を変えられるので便利であろう⁴⁾。

(15)構造因子の計算では等方性の熱振動と異方性のものとの変換をやり易くして、精密化の段階に応じて使い分ければ能率がよい²⁵⁾。

(16)最小自乗法による精密化はいくつかある精密化の方法のうちで最も計算機向きのものであって、多くの研究者が色々の計算機で試みている。問題になる点もいくつかあるので少し詳しく述べてみよう。

第1には空間群の扱い方である。これは(15)や(17)の計算でも同様であるけれども、各原子に異方性熱振動を入れて3次元最小自乗法精密化を行なう大きな計算では特に問題となろう。例えば IBM 704 用のプログラムでいえば Sparks²⁶⁾等の作ったようにどんな空間群でもすべて $P1$ であるかのようにして扱うと非能率的であるし、逆に Sayre²⁷⁾が作ったように空間群ごとに個々のサブルチーンを用意するのも大変である。これら両極端の間の妥協点として Macintyre²⁸⁾は Ahmed 等²⁹⁾がしたように晶系別にするのがよからうといっている。例えば単斜晶系というならば構造因子の幾何学的部分を一般形

$$A = 2L \cos 2\pi(hx + lz + Mk + Nl) \cos 2\pi[ky - (Mk + Nl)]$$

$$B = 2L \cos 2\pi(hx + lz + Mk + Nl + R_1) \cos 2\pi[ky - (Mk + Nl) + R_2]$$

としておいて、例えば Pc なら

$$L=1, M=0, N=0.25, R_1=-0.25, R_2=0$$

とおくやり方である。勿論 Sayre 流のやり方なら一度揃えておけば最も能率はよいのであるから、少なくともよく使われる空間群はそれぞれのものを作って置き、余り使われないものは一般的な形にしておくのが現実的と思われる。飯高・桜井¹⁾による構造因子のプログラムでは2つの方式を用いている。第1は多くの空間群に適用できる計算式は一般に

$$A \begin{Bmatrix} \cos \\ \sin \end{Bmatrix} p h x \begin{Bmatrix} \cos \\ \sin \end{Bmatrix} q k y \begin{Bmatrix} \cos \\ \sin \end{Bmatrix} r l z$$

の形であるから、一応この一般形のプログラムを作製し、計算に先立って別に適当な記号によってその空間群に適合する係数 A, p, q, r を代入する。また同時に \sin, \cos の組合わせを決定する。第2は基本的な計算式として $P1$ および $P\bar{1}$ の2通りを用意し、その結晶の空間群に応じ、与えられた原子の座標から等価の原子の位置を対称操作により順次作りながら計算を行なう。

こういう種類の問題はもっと実際的なこと、例えばプログラムを作る人員と作られたプログラムによって計算される仕事の量などに関係してくることで、そういう条件によって左右される。

第2には最小化すべき函数として普通は

$$D = \sum w(|F_o| - |F_c|)^2$$

を用いているが、Shoemaker 等²⁹⁾の用いた

$$E = \sum w'(|F_o|^2 - |F_c|^2)^2$$

は重価 w' をきめるのに便利である他に、 D より敏感に変化してよいという意見がある³⁰⁾。なぜなら D では $F_c=0$ で微分係数が連続であるために、位相が確かでない反射を捨てることになり、その結果判定に不必要な任意性がはいると考えられるからである²⁹⁾。

第3には対角要素以外の項の扱い方の問題がある。対角要素のみを用いる近似は1958年の米国結晶学会の会議で大分批判された模様であるが、少なくとも原子の重なりがない3次元では偽の極小点に落込むことも余り心配ないようである³¹⁾。ただこの近似では例えば熱振動のパラメーターとスケール因子との間の相関は含めた方が振動しなくてよいという Sayre の意見もあるし、Macintyre は damping factor をかけるだけで振動を防げるといっている。こういうことは結晶によって、またプログラムによって異なる点も多く、直接比較するのは無理ではないかと思われる。今後とも多くの経験が得られることによりはっきりしてくるであろう。しかし大体は2次元でも重なりさえなければ対角要素だけの近似で大丈夫で²⁵⁾、この場合はむしろ収斂の速さの程度に差ができるにすぎない。対角要素以外の項を入れると収斂が早い代りに1サイクル当りの計算時間がかかるのではっきりした差はない。簡単な構造であると非対角要素を入れた方が少し早い、複雑な構造では入れない方が早く行く感じだという意見がある²⁵⁾。この場合の複雑とか簡単とかいう境目は計算機によるのである。IBM 704 級に当る Remington Rand 1103 UNIVAC SCIENTIFIC では 27 position parameters である。何れにしても対角要素だけを使うときには damping factor (スケール, 温度, 原子の移動の各パラメーターに対するものをそれぞれ n_k, n_b, n_x としよう) は始めは $n_b < n_x$ にしておいて位置が或程度よくなってから n_b も n_x も増すのがよい。そして普通 $n_k = n_x$ としている。例えば $n_b = \frac{1}{8}$, $n_x = \frac{1}{4}$, 何回かの後に $n_b = \frac{1}{2}$, $n_x = \frac{1}{2}$ とする例もある。熱振動に異方性を入れると n_b は大きくしてよい。要するに1サイクルごとに

多くの shift が正負に振動していれば n を減らし、逆に収斂がおそいなら n を増せばよいことは明らかである。計算時間そのもののだけの経済を考えれば 1 サイクルごとに結果をよく検討しなければならない。その際普通の R 因子はしばしば misleading であって、上記の D または E , $r=E/\sum w |F_o|^4$ の値などにも同時に注意すべきことは勿論である。今後は次第にこういう判断自体もプログラムに入れておいて数サイクル一挙に行なわせるようになるものと思われる。

非対角要素を入れた場合でも damping factor を必要とする原因の一つは Taylor 展開で構造因子の 1 次微分係数までしかとっていないことである。この見地から計算し易い形で高次の項も入れようという試みもなされている³⁰⁾

複雑な結晶では計算時間を少しでも短くするために、収斂の速度が問題となる。Sparks³¹⁾ は今までに色々の人によってなされた計算を数学的な見地から比較している。非対角要素を全部用いたときとなるべく同じ結果をもっと簡単にしようというのが狙いであるが、次のように結論している。すなわち Cruickshank のやったようにマトリックスを各原子のパラメーターごとにブロックに分けて計算を行ない、さらに conjugate-gradient の方法³²⁾ で収斂の速度を加速するのがよい。

以上かなり個別的に述べたけれども、問題のない計算は次々に行なって、計算機から外へ出すことは必要最小限にして能率を上げるべきことはいうまでもない。ただ途中から計算機にかけたいとか、時間の関係などで一時中断したい時のことも考えて、プログラム相互のつながりをよくしておくことも実用上大切である。

§ 3. 測定の自動化

構造解析に対する計算機の応用の一つとして測定の自動化のことも少しふれておく必要があると思われる。自動回折計は中性子線用では必需といってよいであろうが、最近 X 線用のものも作られるようになってきた³³⁾。例えば英国では Wooster ; Forsyth ; Arndt と Phillips, 米国では Harker ; Pepinsky 等によって作られ、我が国でも物性研、通研などで製作中である。電子計算機のスピードは圧倒的に早いから、回折計を制御するテープを予め計算機で作っておき、自動回折計はこのテープに従って測定を行ない、その結果をテープの形で打出す。このテープを後で計算機にかけて処理するというのが大体の傾向である。

実際に測定するときは α_1 と α_2 の分離などが問題になるが、例えば低角度の範囲では両者を一緒に測り、高角度では α_1 だけの寄与を測るなどのことも行なわれよう。またバックグラウンドの測り方も色々考えられよう。何れにしても、必要に応じて複雑な処理でも自由に後で行なえる。そのために回折計の出力装置が備えるべき性能は比較的簡単ですむ。こうして一連の測定値が出てくると、これを計算機にかけて色々な補正を施し一挙に一組の $|F_o|$ の値を打ち出させることは近い将来かなり普通のことになると思われる。さらに将来計算機もふえて余裕ができれば 1 台の計算機が時分割方式で多くの自動化された各種の測定機械を制御するという方式も使われるようになるかも知れない。そのときには測定機械のある部屋には計算機用の入力出力装置が 1 組ずつ置いてあって、計算機とは配線によって連絡されていることであろう。

§ 4. Phase problem と計算機

§ 2 で列挙した諸計算のうち、消衰効果を実験的にさけるなり、何とか補正すれば、(ii)の

項のいわゆる phase problem の前までは原理的困難はない。また精密化の段階になれば勿論計算機得意の仕事で迅速に行なえる。この中間にある phase problem の扱い方には多くの試みがなされているわけであるが³⁴⁾、この分野では従来行なわれた計算をただ速くやるという量的な差が生じただけでなく、速度に物をいわせて強引にやる新しい、質的に違った試みも出始めているといえる。そういう所に重点をおきながら興味ある研究を紹介してみたいと思う。

この問題についてはフーリエ合成の方から攻めるやり方と構造因子の方から攻めるやり方とに大体分けられる。

4.1. フーリエ合成からの攻め方

対称中心のある場合には、観測された反射が M 個あっても、原点を適当に選ぶことによって、対称性に依じて 1 ないし 3 個の反射の符号は任意にきめうる。それで残りの反射の数を N とすれば、 2^N 通りの符号の組合わせがあることになり、正しいものは必ずその中にある。しかし弱い反射も多いし、比較的少数の強い反射だけが正しい符号をもてば、それによって作られたフーリエ図形をみれば有望であるかどうかの判断がつく。そして一たん正しいものが見つければ精密化するのに困難はない。そこで例えば選んだ反射の中で 7 つに 1 つ符号が間違っているとしてもよいとして条件をゆるめると $2^7=128$ 通りの代りに 16 通り調べれば済み、その組合わせを使えば $N=7n$ のときには 16^n 通りで済むという考えで実際に解析した例がある³⁵⁾。この考えには丁度 2 進法を用いた通信理論で間違いを訂正するための表現に使われている整数論の計算がそのまま適用できるので、はんばな数のときのことも一般的に扱われている³⁶⁾。

それにしてもここで一体どれ位の計算が可能であるのか概算してみることは興味がある。大体現在では入力に光電式の読みこみ機を用いれば相当速いが、出力の方が計算速度に比し段違いにおそくて隘路となっている。しかし簡単のため計算速度だけを考えてみよう。ごく大ざっぱにいて 2 次元で反射の項数を 100 とし、 30×60 の網目でフーリエ合成をやると、PC-1 や IBM 650 級では 10 回/時、PC-2 や IBM 704 級では 300 回/時という所であろう。連続 10 時間使えても余り大きい数字ではない。さらに将来は例えば江崎ダイオードでは 10^{12} サイクルまで働くと予想されている³⁷⁾ ことから計算すると 10^9 回/時程度までになる可能性がある。そうなれば相当な数であるけれども現在は PC-2 級で考えておく方が現実的であろう。そうすると上記の N は僅か 9~10 程度で 2, 3 時間かかってしまうことになる。所で下に述べるように多くの構造因子の符号の間に或る程度関係があるために、色々の手段で調べるべき組合わせの数をかなりへらせるので、数百の程度までやれると大いに利用価値がある。

詳しいことは本誌前号の総合報告³⁴⁾ を見て頂くのが適当であるけれども、 $|F_o|$ の値に誤差がないとしておくと、電子密度の非負性から確率 1 で成立つ不等式とそれの拡張とも見なせる Sayre に始まる等式法とから或る程度位相の間の関係が出てきて可能な組合わせの数が減る。ただし対称中心のない場合は位相が連続的に変りうるから複雑であって実用になる程の制限が得られないことが多い。

何れにしても構造因子 F_o よりもユニタリー構造因子 U_o を用いる方が条件が強くて符号の関係はきまり易い。しかし U_o を使うことは近似であって、そのための誤差もはいつてくるし、またその他に測定誤差によるために考慮すべき条件式の緩和などの問題は一般的には扱い難いと思われる。

従来の不等式はすべて Karle-Hauptman³⁹⁾ によって再発見された Herglotz の定理に含まれ、実用になるものは低次の行列式から得られるものである。これら不等式から電子計算機を用いて符号をきめることは Gillis³⁹⁾ 以来他の人もやっている。不等式法と等式法を併用すると非常に強力になることは桜井⁴⁰⁾, Woolfson⁴¹⁾, Grant^{42, 43)} 等により発表されている。この方法は一見計算機ではやり難いように見えるが、最近の発表⁴⁴⁾ によれば3次元データで符号の組を1つに絞った例がある。こういう方法と密接に関連しているのであるが、始めから計算機向きに考えられた方法もある。Cochran 等⁴⁵⁾ は overall positivity という新しい観点から確からしい符号の組合わせをえらび出し、いくつかのフーリエ図形から判断して正しいものを見つけた。この計算の中には勿論不等式法できまる符号は採用してあるし、Woolfson⁴⁶⁾ が導いた符号をきめる確率の式が用いられ、さらに選んだ構造因子の符号の組に対し Sayre の式を適用して他の項の符号をきめてからフーリエ合成を行なっている。上記の判定で不十分な点を相補的な判定条件で Gillis⁴⁷⁾ が補い、Cochran 等⁴⁸⁾ も追加してさらに適用例をふやした。その後も Cochran^{49, 50)} はこの続きに当る仕事をしており、Woolfson⁵¹⁾ も非常にこれと似た方針で今までの判定法をできるだけ一貫して計算機にかけの試みを発表している。なおこの系統の研究に限らないが、ほとんどすべての計算機は2進法であって0と1とをそれぞれ正負の符号に対応させるるので、計算にも便利であるとともに、符号の組合わせの1つ1つがそれぞれ違った数値に対応し記憶容量が経済的に使えることも大きな利点である。

なお Karle, Hauptman; Bertaut その他による統計的方法の研究がある。対称中心のある場合には実際に成功をおさめた例があるが、計算機を有効に使った例とは思われないので省略する。また対称中心のない場合は主に理論的研究の段階で実際の適用例はないようである。

以上の一連の仕事では幸に符号の組が一義的にきまればよいが、きまらない場合にはフーリエ図形を見て判断しなければならない。場合によっては非常に多数の中から選ぶ必要も起るし、将来は3次元フーリエ図形を判断したいことも多くなると思われる。そういう時には判定も計算機にやらせて時間を稼ぐ必要が起るであろう。そこでいま

$C_n = \int \rho^n(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$ のような overall の性質できまる数値を考えてみよう。比例定数を適当

にとっておけば、 C_0 は単位胞の大きさ、 C_1 は単位胞中に含まれる電子数で別に役には立たないが、 ρ^2 が Sayre の等式の導出に使われ、 ρ^3 が Cochran-Douglas の判定や Woolfson の仕事⁵²⁾ に関係していることからみて、 $C_n (n \geq 2)$ は役に立つのではないと思われる。 C_n の期待値は2次元では原子の重なりのための不確定さがあるけれども、結晶に含まれている原子の種類と数とから予め容易に計算できる量である。一方 C_n の実際の値はフーリエ合成の計算のとき大して余分の計算をすることなしに求められる。この両者を比べることはフーリエ図形の判定に役立つと思われる。特に C_n の値は n の奇偶によって相補的な性質を示すので選択に対して有効であろう。Cochran-Douglas の方法⁴⁵⁾ ではフーリエ合成をやる前に、 C_2 が大きくなるような符号の組合わせを選び出しているのであるが、大きいもの必ずしも正しくはないので、フーリエ合成をしてからいくつかの C_n の値によって真の値と比べることは意味があろう。Cochran-Douglas の第2の論文⁴⁸⁾ は C_2 の大きさを判定に使ったことと同等であると思われる。勿論真の値と比べるといっても、フーリエ図形に使われた項数は少なくて図形が不完全であるからそのための許容範囲をとることが必要である。その他密度

分布を予想される曲線と比べると色々の判定が考えられよう。

こういう overall の性質だけでは不十分であるから、local な性質も考えるべきである。例えば或る値以上の高さをもつ山の数を数えとか、山と山の間の最短距離が不合理に小さいものを捨てるという判定である。これらは重なりのない 3 次元では有効と思われる。計算の途中で不合理な高い山が出たら直ちに止めて次に移って時間を節約できるのであるが、これは予め不等式法を完全に適用してある場合には起らない⁵³⁾。逆にかなりの空間にしかるべき山が現われなければ望みがないから次に移ってよい。また特に 3 次元では球からひどく外れた形で相当の高さの山が出たら止めてよい。何れにしても計算機に判定をさせて、それに合格したものだけを目で調べるというやり方で時間を稼ぎ、思わしいものがなければ判定条件を緩めてみるという方向が考えられる。

最後にフーリエ図形を書くことも時間をとるので、それを書くのに使った項の反射次数から考えて不必要に細かい網目で計算しないよう注意することはいうまでもない。また多くの数値を書き写してからさらに等高線を引くのも時間が不経済なので多少の工夫がなされている。すなわち等高線のゆがみや粗さを大して問題にしないでよいことも多いので、1 桁の数字にしたり⁴⁾、色や大文字小文字の別を利用して²⁵⁾、印刷されたものが或る程度の高低を直接示すようにできる。

判定をもっと高級にしようとすれば要するに図形認識の問題になる。印刷したり書いてある文字を読む機械の設計という方面でいくつかの試みがある^{54, 55)}。例えば 0 と 1 の位相幾何学的な違いは直線的に scan して行ったときに山に 2 度出会うことがあるかないかであるといったものである。こうした試みの中にフーリエの判定にも利用できる方法が出て来るかも知れない。しかし当分はそこまでの判定を計算機にやらせることは望めないであろう。

4.2. 構造因子からの攻め方

原子の位置を仮定して構造因子を計算して実測値に合うものを探するというやり方について述べよう。この方法はフーリエ合成と違って打ち切りの影響がないし、また使った項が少なくても比較的不都合が起らない点、および対称中心の有無でそれ程難易の差がない点で有利である。その代り一部の原子の位置しか正しくないときには判定に苦しむことは勿論である。

§ 2 でも一寸ふれたが image-seeking ないし minimum function の方法で可能なモデルをいくつか探して、これらの構造因子を計算して有望なものを選び出すやり方もこの部類にはいる。この操作を一貫して電子計算機にやらせた例はまだないが、記憶容量の増大などにつれて実行されるものと思われる。

次に極端な場合としてほとんどすべての原子の位置が分っていて残りの原子の位置を求めたいときには D 合成をやれば済むことであるが、次のように考えてみよう。いま少数の原子の位置だけが間違っている場合最小自乗法で精密化するとその原子の熱振動が異常に大きくなる²⁵⁾。これは計算機で容易に検出できる。そしてこういう場合であれば問題の原子の位置を次々に動かしては R 因子を計算しその値を記して等高線を引けば R 因子図形ともいふべきものが得られ、そこに現われたくぼみが原子の正しい位置を示すと思われる。こういう方法は相当部分の原子の位置が正しく分っている場合でないと無効である。Wilson の統計的な考察⁵⁶⁾によれば、原子を全くでたらめに置いた場合でも R 因子の値は対称中心のある場合に 0.828、ない場合に 0.586 が期待される。この数値から考えると、全部の原子が等しくて対称中心のある場合には座標未知の 1 つの原子を動かして R 因子図形を書いたときに意味のある起伏が出るためには非対称単位中の原子の総数が精々 6 程度であろうと考えら

れる。対称中心のないときには原点を1つの原子におき2つ目の原子を動かして計算できよう。しかしこの時も上の R 因子の値は 0.586 でかなりよいから、やはり5個程度までということになる。座標未知の原子の数がふえれば、大体原子をおく網目の数のべき乗で調べるべき図形の数が増えるから、網目は粗くしそれに応じて R 因子の計算に使う反射項を低次のものに限ることが考えられる。また何も図形を書く必要はないので、ある程度以下の R 因子を与えるような原子座標の組だけを計算機が選び出せばそれで済むことになる。なお $|F|$ の分布は原子の数が少ない時と多い時とで違うから、この差を補正して果してどの程度まで使えるか試してみる価値がありそうである。さらに計算機が強力であって実際に存在する原子全部に対して座標を仮定して正しいものを探せれば一番直接的である。

この方向にそった研究として最近発表されたものがある。それは元来散乱現象などの確率過程を数値的に simulate する Monte Carlo 法を適用するやり方である。Vand 等^{57, 59)} が Glasgow 会議および Cambridge 会議で報告しているのでその要旨を紹介しよう。

計算機で作った乱数を N 個の原子の座標として F_0 を求め $|F_0|$ と比べて R 因子を計算する。次にこの F_0 から1つの原子の寄与をさし引き代りに新しい座標をもつ原子1つからの寄与を加えて新しい R 因子を計算する。こうして順次原子座標をとりかえていって、その中で或る程度以下の R 因子を与える座標の組を有望として残すというやり方である。もしすべての座標が偶然にそれぞれ正しい原子のフーリエ・ピークの中にはいってれば最小自乗法で精密化できる。しかしこのようなことが起るに要する試行回数はひどく大きすぎるので IBM 704 をもってしても少し無理である。そこで有望かどうかを判定する前に最小自乗法的に一度改良してみる。これに関連して Niggli 等⁵⁹⁾ はきめるべきパラメーターの数より少数の強い $|F_0|$ をえらんで改良するときには普通の最小自乗法と少し違った shift を用いる方が早く収束することを報告している。こうした改良をした後で判定すれば正しいものにぶつかる確率はふえるわけである。すなわち正しい配置において空間をすき間のない領域に分け、各原子に対して球でなく多面体を属させたとすると、各原子がそれぞれの多面体領域にはいりさえすれば、正しいものがみつかったといえる。この方法で何回に1度正しいものに当たるかを計算すると、原子の数が10個の場合 $P1$ に対して1080回、 $P\bar{1}$ に対して350回程度となり、これなら十分実用になるだろうということである。

こういったやり方をするにはすべての反射を計算に使うことは時間的に不経済でもありその必要もない。Vand 等も $|F_0|$ の値の大きなもの数十個を選んで用いる考えである。

$|F_0|$ ないし $|U_0|$ を少数選ぶ場合、どのような sampling が最良であるかという考察も近いうちに現われるものと期待される。こういう方向に極端に進めば、古くからある Ott-Avrami の方法のような工夫をしないうで、パラメーターと同数の $|F_0|$ を選んでおいて、まともに試謬法で方程式を解くといったことも考えられよう。

最後に何れの方法に従うにしても、homometric structure の存在に留意して判定することを忘れてはなるまい。強引に解く方法では従来よりはこのことが問題になる確率が増すであろうから。

§5. その他の利用法

狭義の構造解析と少し離れるけれども、計算機を記憶装置として利用することにも一すふれておこう。Pepinsky の計画している Groth Institute のように⁶⁰⁾ 結晶データーを百科辞典式に磁気テープに記憶させることは特に改訂、追加、検索、同定、印刷の点で図書とは

違った利点がある。ASTM カードなどもこのような形にしておけばパンチカード以上に便利であろう。しかし現状では種々の実際的困難があり、特に記憶装置の飛躍的進歩がないと万能計算機を使うのは不経済であると考えられる。

なお粉末線だけから指数づけを行う伊藤の方法を計算機にやらせる試みもきいているが^{61), 62)}、主として線の分離や角度の誤差の点で困難があるようである。こういう仕事も適当に条件をゆめめて、いくつかの可能な解を出すという形で将来行なわれるかも知れない。

また拡張された空間群⁶³⁾は繰返し双晶⁶⁴⁾や反強磁性結晶⁶⁵⁾などの整理に既に用いられているが、最近スピンがらせん状配列をした興味ある磁性体^{66), 67)}が発見され、また中性子線回折も普及しつつあるから、今までやや数学的にすぎた観があった研究も原子の異方性熱振動などより以上の具体的表現を得たといえよう。こういう拡張された群は何千という数にもなるので一定の手続きを考えれば計算機を用いて列挙させることもできよう。

§ 6. 計算機使用の現実的問題その他

以上色々計算機を使った仕事について述べたが、計算機はあらゆる分野の人が使用するのであるから時間の割当ては常に不自由なのが現実である。従ってどれ位度々使えるか、申込んでどの位待てば使えるか、まとまって使える時間はどれ位か、費用はどの位かなどということによって仕事のやり方も或る程度変わってくる。

例えば Cochran-Douglas の仕事⁴⁵⁾が出た後で Vand 等⁶⁸⁾は多少の工夫をして、IBM カードは使うが電子計算機はなしですます方法を考えた。そういう工夫をした上で計算機を使えば更に計算時間は短くなろう。逆に例えば Sayre のプログラム²⁷⁾を Vand 等⁶⁹⁾が IBM 704 用の automatic coding である Fortran を用いて書き直しているように、プログラムがひどく大きくなってくると段々誤りをさける楽な作り方がよく使われるようになるが、速度はひどく落ちるから、やはりよく使うプログラムはなるべくコンパクトにすべきであってその辺のかね合いは人手の如何と計算機の性能とそれを使える時間とによって自然にきまるものと思われる。

最近の IBM 7070 や MIT の TX-2 で採用されている割り込み (priority) の機能は PC-2 にもつくことになっている⁷⁰⁾。これを活用すると、Monte Carlo 法のように時間のかかるものは base load problem として、他の計算の合間合間にやってくれるから、何日かかけたままにしておけばそのうちに正しいものが見つかるということになろう。また翻訳などのときに大いに有用になる table search の機能も PC-2 などにはつくことになっている⁷⁰⁾。これがあると表から探し出す操作が速くなるので構造解析の仕事もものによっては大いに速くなろう。

ともかく電子計算機は算術を卒業し代数を会得し、幾何の証明を勉強しているという段階であるから、機械自体およびプログラミングの発達によってどのように性能が進歩し、どのような方向に利用されるかを明確に予言することは難しい。しかし近い将来は一寸した計算は計算機にやらせるものだということになるといわれているから、本稿の標題の如きも遠からず無意味となることは確かである。現在でもただ電子計算機を使ったということで選べば無数の仕事があって紹介するのは意味がない。またプログラムの flow diagram とか、関数の近似式の選び方といったようなことはそれぞれの専門書を参照して頂くのが適当であると思われる。それらは別としても以上述べたことは時間的余裕もなくまた筆者の偏った興味によって紹介したため重要な仕事を落していることを恐れる。足らない点は努めて引用して

おいた総合報告などから補って頂ければ幸いである。またかなり私見で予想めいたことを書いた所もあるが、それらについては御批判を仰ぎたいと思う。

最後に原稿を読んで適切な助言を下さった斉藤教授、最新の文献をお貸し下さった定永、三宅両教授に感謝する次第である。

文 献

- 1) 定永両一：日本結晶学会誌 **1** (1959) 50.
- 2) 高橋秀俊：日本物理学会誌 **15** (1960) 70.
- 3) 飯高洋一，桜井敏雄：鉱物学雑誌 **4** (1959) 198.
- 4) 飯高洋一，桜井敏雄：鉱物学雑誌 **4** (1960) 409.
- 5) 笹田義夫：最新の化学とその応用第12集 (1960) 1.
- 6) Vand, V., Eiland, P. F. and Pepinsky, R. : Acta Cryst. **10** (1957) 303.
- 7) Forsyth, J. B. and Wells, M. : Acta Cryst. **12** (1959) 412.
- 8) Macintyre, W. M. : Acta Cryst. **12** (1959) 761.
- 9) Freeman, H. C. and Smith, J. E. W. L. : Acta Cryst. **11** (1958) 819.
- 10) Silverman, J. N. and Simonsen, S. H. : Acta Cryst. **13** (1960) 50.
- 11) Cochran, W. : J. Sci. Instr. **25** (1948) 253.
- 12) Albrecht, G. : Rev. Sci. Instr. **10** (1939) 221.
- 13) Howells, R. G. : Acta Cryst. **3** (1950) 366.
- 14) Rogers, D. and Moffett, R. H. : Acta Cryst. **9** (1956) 1037.
- 15) Henshaw, D. E. : Acta Cryst. **11** (1958) 302.
- 16) Smith, D. K. : Acta Cryst. **12** (1959) 479.
- 17) Busing, W. R. and Levy, H. A. : Acta Cryst. **10** (1957) 180.
- 18) Wells, M. : Acta Cryst. **13** (1960) 722.
- 19) 細谷資明，佐竹誠也：未発表.
- 20) Wilson, A. J. C. : Acta Cryst. **2** (1949) 318.
- 21) Howells, E. R., Phillips, D. C. and Rogers, D. : Acta Cryst. **3** (1950) 210.
- 22) Srinivasan, R. : Acta Cryst. **13** (1960) 388.
- 23) Jacobson, R. A., Penfold, B. R. and Lipscomb, W. N. : Glasgow 会議の報告 (1960).
- 24) Cowley, J. M. : Acta Cryst. **9** (1956) 397.
- 25) Rossmann, M. G., Jacobson, R. A., Hirshfeld, F. L. and Lipscomb, W. N. : Acta Cryst. **12** (1959) 530.
- 26) Sparks, R. A., Prosen, R. J., Kruse, F. H. and Trueblood, K. N. : Acta Cryst. **9** (1956) 350.
- 27) Sayre, D. : I. B. M. Announcement (1956).
- 28) Ahmed, F. R. and Barnes, W. H. : Acta Cryst. **11** (1958) 669.
- 29) Shoemaker, D. P., Donohue, J., Schomaker, V. and Corey, R. B. : J. Am. Chem. Soc. **72** (1950) 2328.
- 30) Wegener, H. A. R. : Acta Cryst. **13** (1960) 186.
- 31) Sparks, R. A. : Glasgow 会議の報告 (1960).
- 32) Hestenes, M. R. and Stiefel, E. : J. Res. Natl. Bur. Stand. **49** (1952) 409.
- 33) 飯高洋一：日本結晶学会誌 **2** (1960) 41.
- 34) 斉藤喜彦：日本結晶学会誌 **2** (1960) 2.
- 35) Woolfson, M. M. : Acta Cryst. **7** (1954) 65.

- 36) Good, I. J. : *Acta Cryst.* **12** (1959) 824.
- 37) 高橋秀俊 : *科学* **30** (1960) 320.
- 38) Karle, J. and Hauptman, H. : *Acta Cryst.* **3** (1950) 181.
- 39) Gillis, J. : *Acta Cryst.* **11** (1958) 833.
- 40) 桜井帰一 : *X線* **8** (1955) 51.
- 41) Woolfson, M. M. : *Acta Cryst.* **10** (1957) 116.
- 42) Grant, D. F., Howells, R. G. and Rogers, D. : *Acta Cryst.* **10** (1957) 489.
- 43) Grant, D. F. : *Acta Cryst.* **10** (1957) 498.
- 44) Grant, D. F., Hine, R. and Richards, J. P. G. : *Acta Cryst.* **13** (1960) 996.
- 45) Cochran, W. and Douglas, A. S. : *Proc. Roy. Soc.* **A227** (1955) 486.
- 46) Woolfson, M. M. : *Acta Cryst.* **7** (1954) 61.
- 47) Gillis, J. : *Acta Cryst.* **9** (1956) 616.
- 48) Cochran, W. and Douglas, A. S. : *Proc. Roy. Soc.* **A243** (1957) 281.
- 49) Cochran, W. and McIver, E. J. : *Acta Cryst.* **11** (1958) 892.
- 50) Cochran, W. : *Glasgow 会議の報告* (1960).
- 51) Woolfson, M. M. : *Glasgow 会議の報告* (1960).
- 52) Woolfson, M. M. : *Acta Cryst.* **11** (1958) 277.
- 53) 細谷資明 : *物理学会年会講演* (1960春).
- 54) Grimsdale, R. L., Summer, F. H., Tunis, C. J. and Kilburn, T. : *Proc. Inst. Elec. Eng.* **B106** (1959) 210.
- 55) Kazmierczak, H. : *UNESCO 情報処理会議の報告* (1959).
- 56) Wilson, A. J. C. : *Acta Cryst.* **3** (1950) 397.
- 57) Vand, V. and Niggli, A. : *Glasgow 会議の報告* (1960).
- 58) Vand, V., Niggli, A. and Pepinsky, R. : *Acta Cryst.* **13** (1960) 1001.
- 59) Niggli, A., Vand, V. and Pepinsky, R. : *Acta Cryst.* **13** (1960) 1002.
- 60) 星埜禎男 : *日本結晶学会誌* **1** (1959) 43.
- 61) Guinier, A. : 私信.
- 62) 床次正安 : 私信.
- 63) 定永両一 : *日本物理学会誌* **15** (1960) 451.
- 64) 定永両一 : *鉱物学雑誌* **4** (1959) 1.
- 65) 井上泰 : *日本物理学会誌* **15** (1960) 690.
- 66) 永宮健夫 : *物理学会分科会講演* (1960秋)
- 67) 安達健五, 山田玄彦 : *金属物理* **6** (1960) 237.
- 68) Vand, V. and Pepinsky, R. : *Z. Krist.* **107** (1956) 202.
- 69) Vand, V. and Pepinsky, R. : *Z. Krist.* **111** (1958) 46.
- 70) 高橋秀俊 : *電子計算機講習会テキスト* (1959) 103 (日本物理学会).

三 次 元 顕 微 鏡

砂 川 一 郎*

1 ま え が き

顕微鏡の果す役割には、観察と測定との2つの面がある。観察の面では、油浸によって倍率を高め、電子顕微鏡によって超高倍率を得、又位相差装置・紫外線装置・暗視野等各種の方法によって観察可能の分野がたいへんひろまっている。更に立体顕微鏡や、電子顕微鏡のステレオ装置により、物体を立体的に観察することも出来る。これに対して測定の方では、マイクロアイピース等による長さの測定、メッシュやインテグレーションテッシュなどによる面積の測定、Interferometry や light cut method などによる高さ、深さ、厚さなどの測定方法がある。このうち、長さ・面積の測定、つまり二次元的測定は、多くの顕微鏡使用者によって、よく使われているが、高さ、深さなどの三次元的測定は、干渉顕微鏡のような特殊の顕微鏡をもった研究者の間では行われているが、一般の顕微鏡使用者の間では、余り広く行われていない。しかし、三次元的測定の必要は、最近、基礎分野でも応用分野でも急速に高まって来ている。例えば、薄膜の厚さ、結晶面上にみられる渦巻成長層の厚さなどの厳密な測定、物体表面のあらさの測定などはその例であろう。

深さ、厚さなどの三次元的量の測定器械として、国内でも既に干渉顕微鏡や光切断装置が数社から発売されている。しかし、前者の場合、数百 Å 迄、後者の場合数千 Å 迄の測定能力しかもっていない。ところが、例えば、結晶面上にみられる渦巻成長層の厚さを測定する場合など、10 Å 前後乃至はそれ以下の厚さの正確な測定が要求される。又逆に一方では数 μ 前後の大きな量の測定が要求される場合もあろう。数 Å から数 μ 位迄の広い範囲にわたる測定方法が確立してはじめて、顕微鏡の測定面での役割が観察面での高度の発達に追いつき、両々相まって顕微鏡のもつ機能を最高度に発揮することが出来るようになるのだといえよう。

London 大学 Royal Holloway College の S. Tolansky 教授は、過去十数年の間、高さ等の正確な光学的な測定方法の研究を行い、彼によって発展された方法を、多種類の物体の微細構造の観察測定に応用し、数多くの成果を発表して来た。この研究室で発展された方法は、10 Å 前後の小さい量迄正確に直接測定することの出来る multiple-beam interferometry 及びその応用技術、同程度の測定能力をもつとともに、表面構造の高低を一義的に判定出来る fringes of equal chromatic order (FECO)、2000 Å 前後迄の測定を行う light-profile microscope、2 μ 程度までの大きい量の測定を行う optical shadow casting method 等である。これらの方法を用いて得られた成果の主なものは、ダイヤモンド結晶の表面微細構造の研究¹⁾、Frank の結晶成長説の発表後最初の渦巻成長層の発見及びそれらの厚さの正確な測定²⁾、薄膜の厚さの測定法³⁾ 等である。この教室で発展されたこれらの光

* 工業技術院地質調査所

学的測定方法は、顕微鏡で観察出来る範囲の厚さ高さ等の量の全ての領域、つまり一結晶格子の大きさ乃至それ以下からはじまって、その数千乃至数万倍の量までの全領域をカバーしており、且つそれらの実際の実験方法は甚だ容易且つ驚くべく僅の経費でまかなえる。従って、ここで採用している方法を一括紹介することは、広い分野の研究者にとって益するところがあると思われる。筆者は2年間、同教室でセキテツ鉱、SiC、人工ダイヤモンド等の結晶面の表面の微細構造の研究を行い、それらの方法を活用していたので、その経験を中心として各方法を紹介したいと思う。interferometry等の基礎的な理論は、周知のことであるので、ここでは一切とり扱わず、具体的な実験方法、実験上の注意、測定結果の数例、応用技術等に記述の焦点をしぼりたい。

2 Multiple-beam interferometry^{12, 14, 16)}

いわゆる Newton's Ring と呼ばれる光の干渉現象が知られたのは3世紀も前のことであるが、実際にこの ring がレンズ表面の等高線を示していることに Laurent が着目したのは、僅に前世紀後半 1883 年のことである。その後この干渉縞の特性は、レンズやプリズムなどの表面仕上を鑑定する方法に広く応用されて来た。しかし、この干渉の場合、干渉に関与する beam は、2つの物体表面の一次反射に限られるので干渉縞はたいへん巾広く、精々光の波長の $\frac{1}{10}$ 程度の高低差しか測定することは出来なかった。これより先 1831 年に Airy は無限数の beam が干渉に関与することを考慮に入れた数式を導き出している¹⁾。これに着目した Boulouch は、物体表面に金属薄膜を蒸着させて反射率を高めることによって、あるいは全内部反射を起すのに近い角度をつけて光を入射させることによって、多数の beam を干渉に関与させ、結果として、干渉縞が非常に sharp になり得ることを示した²⁾。平行平面の場合については、この考え方はさっそく Fabry-Perot Interferometer³⁾ として発展し（前者の方法）、又 Lummer-Plate interferometer として発展した（後者の方法）。傾斜面間の場合（両面の間が Wedge となる場合）は、1944 年に Toransky が Boulouch の考え方を発展させて、ここでいう multiple-beam interferometry を完成したのである¹¹⁾。傾斜面間の場合、一方の面が平面で、他方がある表面構造をもっているとする、干渉縞は、後者の表面構造に忠実に従い、その高低・凹凸に応じた干渉縞の displacement が生ずる。この displacement はいうまでもなく step の高さ h に相対的に比例し、次式であらわされる。

$$h = \frac{S}{X} \cdot \frac{\lambda}{2}$$

ここで λ は用いた光の波長。X は相隣る干渉縞の間隔である。従って、干渉縞のずれ等から高さ、深さ、厚さ等を測定することが出来る。そして干渉縞の巾が狭い程、測定の精度があがるわけである。

さて、multiple-beam interferometry の場合、単に2つの表面の反射率を高めるだけでは、sharp な干渉縞は得られない。sharp な縞を得るためには、実験上次のような条件が厳密に得られなければならない。

1. 2つの表面の間隔が非常に小さく、光の波長程度の間隔であること。
2. 両表面が反射率 90%を越える程度に高い反射率をもつこと。
3. 用いる光は、厳密に平行光線であつ単色光であること。
4. 両表面間の傾斜角がごく僅であること。

5. 反射率を高めるために表面に蒸着させた膜が、厳密に表面構造を **contour** していること、である。

これらの条件を得るために、実験に際して次のような手続がとられる。

2.1 表面の洗浄

optical flat (これには、市販の **optical flat** もよいが、写真乾板の膜面をはがしたものの方がより好結果を得る。写真乾板でも顕微鏡で見る程度の狭い面積では十分に平面である。) と試料表面の両者を充分洗浄しないと、銀の蒸着を一行に行えない。洗浄には普通、過酸化水素液^{*}、**detergent solution**、水の順序で充分に洗い、脱脂綿で徹底的にふいて、息をふきかけても、くもりが瞬時に消え去る程度に乾燥させる。更に試料を真空蒸着装置内で蒸着を行う前にイオン照射を行うことによって、表面に附着した異物は殆んど完全に除去出来る。試料表面の徹底的な清浄化は、良い干渉縞を得るための必須条件である。

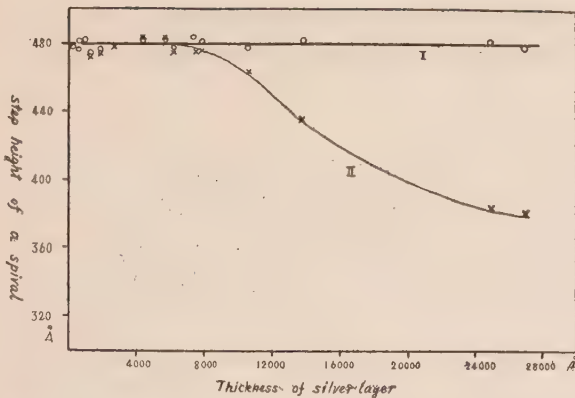
2.2 Silvering

optical flat と試料の両表面の反射率を高めるのにはいくつかの方法があるが、最も一般的につかわれている方法は、真空中で銀の薄膜を蒸着させる方法である。この目的のためには普通の真空蒸着装置で充分である。但し少くとも 10^{-5} 程度の真空度を必要とする。フィラメントに銀粒を置き、適当な距離に蒸発する銀粒子の方向に垂直に試料表面を保持して銀の蒸着を行う。良好な干渉縞を得るためには、表面の反射率、つまり蒸着された銀の層の厚さを最適の状態にさせねばならない。最適の反射率は、**optical flat** と試料とで異り、また透過の場合と反射の場合とで異なる。更に透過率、吸収率も考慮に入れなければならない。透過光の場合、最適の反射率は約 90% で、これは Ag 層の厚さ約 500\AA に相当する ($\lambda=5461\text{\AA}$ の波長を使った場合)。反射光の場合、**optical flat** に対しては、80~85% の反射率、試料表面は 95% 以上の高い反射率が適当である。これらの反射率は **optical flat** では 4~500 \AA の厚さ (透過度の場合よりも少な目の)、試料では 700~1200 \AA に相当する。これらの適当な反射率が得られたか否かの検討には、次のような方法があるが、結局は、経験に頼るのが一番早道である。検討の方法の 1 つとして、銀蒸着させた **optical flat** を太陽光ですかし、その色を見る方法がある。反射率 80~85% (反射用) で薄い blue に、90% (透過用) でやや濃い blue にみえる。また銀蒸着させた 2 枚の **optical flat** を重ねて密着し眼の近くにおいて、明るい電燈のフィラメントを約 1 m の距離でみる。そして一方を僅に傾けるとフィラメントの何重にも重なったイメージが見える。反射率 90% 以上の表面になっていると、180 個以上のはっきりしたフィラメントのイメージがみえる筈である。またイメージの色が高次の方に向ってゆっくりと黄色となり、かつ最初のイメージがより青い場合、良好な反射率のものである。

上述の方法で試料表面を **silvering** した場合、Ag 層の厚さ 28000 \AA 位のものまで、試料の表面構造を忠実に **contour** することが実験的に確められている¹⁷⁾。即ち SiC の (0001) 面上の既知の厚さをもった渦巻成長層に 250 \AA から 26700 \AA 迄の厚さの **silvering** を段階的に行って、成長層の厚さを測定した結果、第 1 図のような結果が得られた。即ち成長層の中央部で測定した場合 28000 \AA 迄、稜で測定した場合 6000 \AA 迄非常に **Constant** な値が得られている。

通常の試料で高くかつ効果的な反射率を得るためには、上述の銀蒸着法が最も良い結果を

* これは試料を再度 **Silvering** する際、古い Ag 膜を除去するのにも非常に効果的な試薬である。



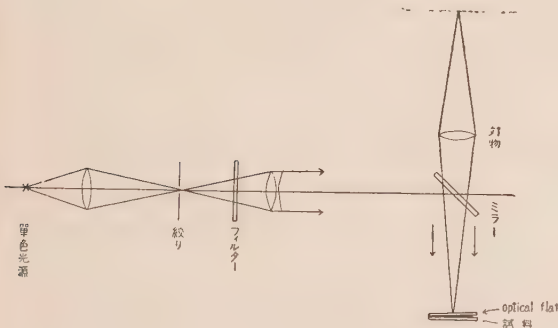
第1図 Silvering による表面構造の contouring の忠実度

I渦巻成長層の中心部で測定した場合

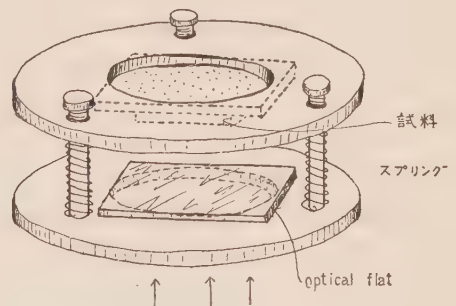
II成長層の稜の部で測定した場合

特殊な方法として、後述のように水銀の3本の線 $\lambda=5461, 5770, 5790\text{\AA}$ の全てをつかう場合もある。光源としては、高圧“Sieray”点光源のものがつかい易い。

平行光線は普通の組み合わせで充分である。顕微鏡は透過光の場合、普通の顕微鏡で充分であるが、反射光の場合、高倍率だと平行光線が得難くなるから、なるべく低倍率の対物レンズを使う必要がある。透過用顕微鏡の対物レンズの下に、平行ガラス板を一枚そなえて mirror の作用をさせても充分反射光用に代用することが出来る。教室では Vicker's Projection microscope を主としてつかっていた。これは、大型の顕微鏡で、反射透過両用で顕微鏡写真、FECO (後述) 用光源水銀光源の全てをそなえており、Tolansky の指導によって主として multiple-beam interferometry 用につくられたものである。反射の場合の optical arrangement の略図を第2図に示す。



第2図



第3図

良い干渉縞を得るための必須条件の1つである、試料表面と optical flat の間隔を小さく保持するためには第3図に示した jig と称する小道具を用いる。試料と optical flat を図のようにセットし (透過の場合は逆)、3本のねじで両者を出来るだけ小さい角度で密着させる。顕微鏡下で観察しながら、ねじを適当にうごかしてゆくと、やがて sharp な干渉縞

得、他の metal はこの比ではない。しかしいわゆる multilayer film をつかうと、高い反射率を得ると共に低い吸収率のものが得られるから、良結果が得られる。ただ、実験上 silvering よりも複雑で、技術を要する。multilayer として ZnS と cryolite が使われる。詳しくは文献 12, 19, 20。

2.3 実験装置

単色光として水銀の $\lambda=5461\text{\AA}$ の波長が普通つかわれる。この波長を得るために水銀ランプの前に filter を置くのは勿論であるが、

が得られる。測定しようとする構造に直角に干渉縞が走るようにねちで調節し、得られたら顕微鏡写真をとればよい。写真のプロセスは、なるべく高いコントラストを得られるように注意するだけで他は全く普通通りである。

2.4 測 定

測定は、得られた干渉写真の乾板について、comparater で行う。干渉縞のずれ、相隣る関連する干渉縞の間隔を読みとり、既述の式に従って step の高さを計算する。ここで特に注意しなければならないことは、ずれた先の縞が、元来の縞と正しく対応しているかどうかを十分に検討することである。つまりずれが実験に d か、あるいは $d + n \cdot \frac{\lambda}{2}$ のものに相当するか否かに十分な注意を払うことである。この検討には、フィルターをつかわず mercury lamp の 3 本の波長をつかって観察するのが便利である。つまり 3 組の干渉縞が対応する線を選べばよいわけである。また後述の FECO を用うればこのことにこだわらず一義的に高さを決定出来る。

2.5 得られた結果の数例

写真 1 a, b は夫々低倍率で撮影された雲母の劈開片の透過、反射の multiple-beam interferogram であり、写真 2 はセキテツ鉱の底面の反射による干渉写真である。透過光では干渉縞は白で、反射光では黒であられる。干渉縞のずれは、夫々、劈開片の step 乃至は成長層の step の位置にあらわれている。写真 3 a, b は SiC 結晶の c 面上にみられた渦巻模様の位相差顕微鏡写真と、同じ場所の multiple-beam interferogram で、干渉縞のずれが、見事に渦巻成長層の step と対応していることがわかる、縞のずれから測定計算したこの渦巻成長層の厚さは 150\AA である。さてこれらの干渉写真上で、干渉縞の巾と相隣る縞の間隔とを比較してみるとわかるように、干渉縞の巾は、普通間隔の $1/50$ 程度である。つまり two-beam interferometer に比して約 100 倍の sharp さをこれらの干渉縞はもっているわけである。コムペレーター上で読みとれば比較的容易に干渉縞の巾の $1/5$ 程度のずれまでは測定出来るから適当な条件をもって得られた良好な multiple-beam interferogram 上では、 10\AA 程度の高さの差迄は直接に測定することが出来るわけである。 10\AA といえば、普通の鉱物の単位胞程度の大きさであるから、これは誠に驚くべき精度であるといえよう。

さて、これ以下の大きさも、間接的な方法を使えば測定可能である。写真 4 a, b は同様に SiC の c 面上にみられた hexagonal spiral の位相差顕微鏡写真と、multiple-beam interferogram である。位相差写真でわかるように spiral の成長層は、等間隔でたいへん規則正しく配列している。各層の厚さは、この spiral がただ 1 枚の screw dislocation から出発しているのであるから、完全に等しいとみなされる。各層間の間隔が狭いためと厚さが小さいために干渉縞は、各層の稜のところで認め得るようなずれを示していない。そのかわり、spiral の頂点を通る干渉縞は、そこを頂点とした見事な三角形の peak を示している。つまり、この三角形の高さが、この spiral の全体の高さに相当するわけであり、かつ spiral の layer の数は位相差写真上で数えることが出来るから、両者の値から一枚の layer の厚さの平均値を算出することが可能である。こうして求めたこの spiral の厚さは 15\AA であった。同種の方法によって、著者は SiC 結晶上で 5\AA , 7.5\AA , 10\AA 等の、またセキテツ鉱の底面上で、 2.3\AA , 4.6\AA , 7\AA , 10\AA 等の spiral layer の厚さを測定することに成功した^{8,9)}。これらの値は、多数例についての測定の結果で、得られた値は夫々にたいへんよい一致を示していた。セキテツ鉱の場合 c 軸方向の単位胞の長さが 13.73\AA であるか

ら、 2.3\AA はこの $\frac{1}{6}$ に相当する。セキテツ鉱の単位胞は6枚の layer で構成されているから、この値は只1枚の高さに相当するわけで、光学的方法でこういう小さい量まで測定出来ることは、まことに驚くべきことといわねばなるまい。

2.6 特殊技術

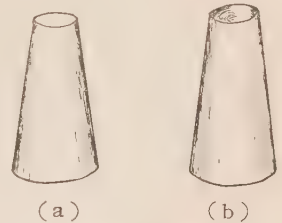
上述の方法では、sharp な干渉縞を得るためには optical flat と試料表面との間隔を密着させなければならないので、試料表面が非常に平坦なものでなければ良い干渉縞は得難い。大きい凹凸や、突起がある場合とか面が甚だしく弯曲している場合などには、上の方法では sharp な干渉縞を得ることは困難である。また両者を密着させるため試料自身が相当な強度をもっていないとしばしば試料を破かいすることがある。しかし実際には、こうした条件をみたさない試料が多い。その場合にも測定が行えるように次のような諸種の特殊な方法が考えられている。

2.6-a Thin film method

最初 Tolansky・Omar が考え出し¹⁶⁾、次いで Joshi が改良した方法で¹⁷⁾、非常に不規則な表面をもつ試料に応用出来る。Joshi の改良した方法は次の如くである。先ず試料表面を通常の厚さ ($700\sim 1000\text{\AA}$) に silvering する。アセトン乃至アミル・アセテートに溶解したコロデオンの稀薄溶液を試料表面上に注ぎ、その液が乾燥しないうちにより濃厚なコロデオン液を前液の上に注ぎ、乾燥させる。第一液は、試料の表面構造にほぼ忠実な、表面をつくるが、第二液によって出来た表面は、狭い範囲内では割合に平坦な表面をつくる。乾燥後、再び真空蒸着装置内で約 90% の反射率をもつように silvering する。コロデオンの薄膜上につくられた Ag 層を通して単色光を入射させ、顕微鏡トで観察すると、写真5で1例を示したような甚だ sharp な干渉縞が、試料上の何処かにあらわれている。幸にして干渉縞が数本あらわれている場合は、普通の方法により、干渉縞が1本しかない場合は FECO によって step の高さが測定出来る。ただ、この方法では、コロデオン膜の最上層が平坦でなく、また甚だしい場合には、試料表面の地形を contour していることすらあるから、干渉縞は sharp ではあるが測定値*は必ずしも信頼が置けない。他の方法で必ずチェックする必要がある。もう一つの欠点は、干渉縞が希望する位置にあらわれるとは限らないことである。Tolansky & Omar の方法はコロデオン液のかわりに薄めたカナダバルサムを使う方法である。この方法では Joshi の方法程に sharp 干渉縞を得ることは出来ないが、そのかわり測定値の信頼度は Joshi の方法よりも高い。

2.6b Microflats 及び Plano-concave microflats¹⁷⁾

大きな凸出物がある場合、凹凸がはげしい場合などに底の方にある小さい feature の高さを測定する際に用いる。先づ厚い optical flat から適当な大きさの円筒をつくり、側面を研磨して第4図aのような形のものをつくる。大きい方の表面を silvering する。これを optical flat として希望の feature の部分に密着させ、通常の手続で multiple-beam interferogram が得られる。この場合、干渉縞は余り sharp でなく、かつ分散も小さい。しかし、普通の方法では測定出来ないようなところの feature の高さがある程度の信頼度をもって測定出来る利点がある。



第 4 図

* コロデオンの屈折率により $\lambda=5461\text{\AA}$ のかわりに $\lambda=3880\text{\AA}$ として計算しなければならない。

Plano-concave microflats は、例えば人工水晶の底面にみられるような構造、即ち小さいお椀がたくさん並んだような構造の個々のお椀の geographical interferogram (後述) を得るためにつかわれる。適当な方法によって Plano-concave レンズから microflats を切り取り、上と同様に整形し且つ silvering して、希望のお椀状構造に（これも silvering しておく）凹面をかぶせ、単色光を用くと geographical dispersion が得られる。plano-concave lens のかわりに、perspex を用いてもよい。この場合は種々の径をもつ金属球を凹面をつくる整形用として用いると希望の曲率をもつ plano-concave microflats がつくられる。plano-concave の場合には geographical dispersion の干渉縞しか得られず、測定には不向きである。

2.6c Internal reflection interference fringes

薄板状で透明な結晶の場合には、この方法は大変有効である。殊に試料の強度が弱く、optical flat で強く press することが出来ない場合には最適である。又物質によっては、一方の面を polish して薄くした上でこの方法を応用しても好結果が得られる。

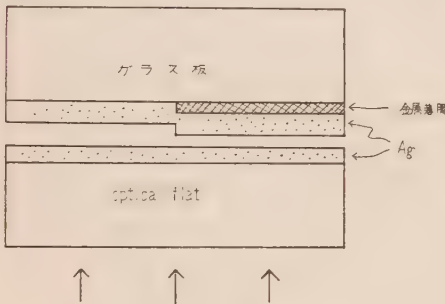
この方法は最初 Tolansky が mica の劈開片を研究する際に考え出したもので¹²⁾ 次いで Forty²¹⁾、Verma & Reynolds²²⁾ 等が結晶成長の研究に改良・応用したものである。Tolansky の方法は、mica の非常に薄い劈開片の両面を silvering してこれを 2 枚のガラス板にはさみ、単色光を用いて観察する方法である。劈開片両面上の Ag 層間のくりかえし反射によって multiple-beam internal interference が得られる。同時にガラス板と表面との間に起るかすかな二次干渉縞も得られる。こうして得られた interferograms からは、直接高さ等の測定は出来ないが、後述の FECO を用いることによって測定可能である。又これらの interferograms は、mica 中に含まれる inclusions の状態、mica の複屈折等を非常にはっきり示してくれるから、その面での活用が考えられる。

Forty, Verma & Reynolds 等が上の方法を、成長層の高さの測定に応用した方法は、次の如くである。ガラス板上に置かれた溶液から結晶を成長させるとき、多くの場合ガラス板に接した部分では、成長丘は発達せず、平面であるが、溶液にさらされている部分は成長層がよく発達する。これを単色光で観察するとこの平面側と成長層がよく発達した他の表面との間に internal interference が起り interferogram が得られる。これは two-beam interferogram であり、成長丘の発達した面の表面地形を contour した干渉縞が得られ、それらの縞は成長層の稜に平行である（写真 6）。複屈折結晶では、縞は勿論二重になってあらわれる。ところで、相隣る 2 本の干渉縞の間に存在する成長層の数 n を測定すれば、その高さは $h = \lambda / (2\mu n)$ で得られる。 μ は medium の屈折率（用いた波長に対する）。但し two-beam であるため干渉縞間隔を測定するためには microphotometer を用いる必要がある。複屈折結晶の場合には適当な方位のニコルを使えば一方を消すことが出来る。時に両面に表面構造をもっている場合があり、この場合にも干渉縞があらわれるが、測定には使えない。Forty はこの種の two-beam internal interference fringes を使って CdI_2 の spiral layer の厚さを測定した²³⁾。Verma & Reynolds²²⁾ は、stearic acid 上の spiral layer の厚さの測定に、Forty の方法を改良した multiple-beam internal interference 法を使った。これは、適当な厚さに silvering したガラス板状に結晶を成長させ、成長後試料を乾燥させた後その表面を 90% 反射率が得られるように silvering して単色光で観察する方法である。2 つの Ag 層間で繰り返えし反射が起り、干渉縞は甚だ sharp となる。写真 7 は stearic acid の結晶面の位相差顕微鏡写真上に、multiple-beam internal interference

fringes を重ね焼きしたものである。この写真でわかるように、干渉縞は大変 sharp となり、測定は容易且つ正確となる。Verma 等は stearic acid の C 軸方向の単位胞の高さの半分の値まで測定している。尚 spiral layer の数は、別途に位相差顕微鏡写真上で測定しなければならない。

2.6-d 薄膜の厚さの測定

各種の金属薄膜の研究は最近とみに盛になり、重要視されて来た。この際、薄膜の厚さを正確に知る必要がある。そのため従来各種の方法がとられて来たが、以下に述べる multiple-beam interferometry を応用した方法が最も正確で且つ小さい値を測定出来るので有効である。この方法は最初 Donaldson & Khamsavi により試みられ、次いで Heavens & Pandeya によって行われた⁶⁾。原理は至って簡単で第5図に示したように、目的とする薄膜をガラス板上の一部に蒸着させ、それを更に



第 5 図

silvering し、silvering した optical flat を重ねて、通常の手続で multiple-beam interferogram を得る。薄膜の縁に相当するところに干渉縞のずれが生じ、このずれが薄膜の厚さに相当するわけである。適当な条件を得れば 10 \AA 位迄の薄膜の厚さを測定することが出来る。

2.6-e レプリカ法

強い加圧を行えないような物質にはレプリカ法を用いることが出来る。又金属の interference

を得る際、必然的に導入される反射の際の differential phase change による妨害を除去するため、あるいは、高倍率の対物をつかうためにもレプリカ法が用いられる。

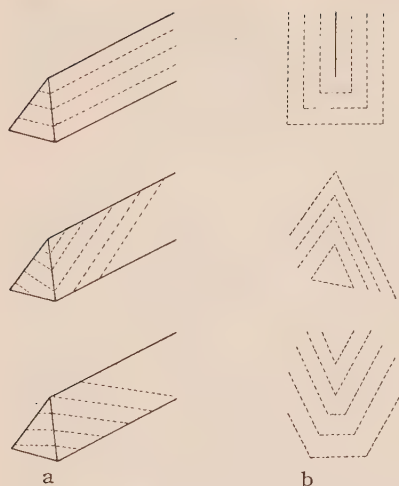
材料として polymethyl methacrylate か polystyrene を用いる。加熱・加圧して試料の表面構造をこの材料でもって型どる。加圧の際ガラス板で、試料表面に置かれた材料を押し、出来上った型の一方は試料表面の、他方は optical flat のレプリカであるようにする。尚この際型の両面が可及的平行で且つ型が薄いものになるように留意しなければならない。尚、レプリカにひび割れ、ひずみなどが入らないように充分注意して徐冷する必要がある。出来あがったレプリカの両面を silvering するか、構造のある側のみ silvering して他の optical flat と組み合わせるかして、通常の手続により sharp な multiple-beam interferogram が得られる。レプリカの三次元的な忠実度を、mica, calcite, metal などの表面について検討した結果、一般の場合忠実度は大変高く、 10 \AA 位の小さい高低差も再現し得ることが確かめられている。

2.7 応用方法

上述は、multiple-beam interferometry を高さ等の測定に応用する方法を述べたものであるが、これ以外に、例えば表面構造の観察にも用いて高い効果を上げることが出来る。その数例を下記する。

2.7-a Surface topography

第6図に示したように、同じ構造のものも、optical flat のそれに対する位置によって異った interferograms が得られる。従って optical flat の傾斜を少しづつ変え、その際起る干渉縞の動きから、凸起か凹地かを区別することが出来る。又ある構造、例えば growth hill の側面の角度（これは普常非常に小さくて、側角器でも測角すること出来ない）を知



第 6 図

称し, quartz の r 面について得た写真を写真 8 に示す。この写真の三角形模様は、そのまま実際の表面にみられる三角形の成長丘に対応している。二本の相隣る干涉縞の間に存在する成長層の枚数が顕微鏡写真上で測定出来れば、成長層の一枚の厚さがこの interferograms から容易に計算出来るのは勿論である。成長丘の slope の角度、異った方向での成長速度なども又これから算出することが出来る。

2.7.c High-dispersion Fizeau fringes^{12) 14)}

通常の set の optical flat と試料とで先づ普通の dispersion の multiple-beam interferogram を得、それをもととして zig のねじを適宜に調節して high dispersion (相隣る干涉縞の間隔の大きい) の interferogram を得る。次いで filter を除いて mercury lamp の 3 本の線全部を使うと、写真 9 で 1 例を示したような interferogram が得られる。high dispersion のため干涉縞が巾広くなるから、表面構造の微細な部分まで余すところなくはっきりとあらわれて来る。こうしてあらわれた表面構造は、通常の顕微鏡では、全然観察することの出来ないような小さい高さをもつ構造である。つまりこの方法は、表面の僅の凸凹まで明示する点で位相差顕微鏡と同様の (時にはそれ以上の強いコントラストをもつた) 役割を果すことが出来るものと云える。更に、この干涉縞の intensity は、非常に僅の高低差で急激に変る。計算によれば僅かに 3\AA の高低差は intensity の 10% の変化としてあらわれる。従って干涉縞中の intensity の変化から、極く僅の高低差を概略推定することも可能である。但し high dispersion の場合には、隣接する干涉縞が得られ難いから、実際の正確な計算は出来ない。この困難をのりこえるために次の方法がある。

2.7.d Crossed fringes

先づ通常の dispersion の interferogram を、mercury lamp の 3 本の線をつかって乾板上に撮影する。乾板をそのままにしておき、zig のねじを調節して上の干涉縞と直交乃至斜交するような方向をもつ high dispersion の干涉縞を得て前の乾数上に 2 重露出する。又直交する 2 組の low dispersion fringes を二重露出した上で、high dispersion fringes を更に重ね露光してもよい。こうして得られた干涉写真の一例を写真 10 に示す。これらの干涉写真は、表面構造のディテイルを余すところなく示すのみでなく、sharp な low dispersion fringes を reference として巾広の high dispersion fringes 上のずれとか intensity

りたい時には、適当な interferogram をつくって干涉縞の bend した角度等から計算することが出来る。詳しくは文献¹²⁾。従って、同一試料表面について種々の interferograms をつくることにより、step の高さのみならず、各種の surface topography を量的に知ることが可能である。

2.7.b Geographical dispersion

Wills が quartz 結晶の表面構造を観察する際に考え出した方法²²⁾。試料表面に出来るだけ平行になるように optical flat を set すると (zig のねじを調整する)、表面の構造そのままに応じた等高線図形が得られる。この原理は第 6 図 a に示した如くである。かくして得られた interferograms を geographical dispersion による interferograms と

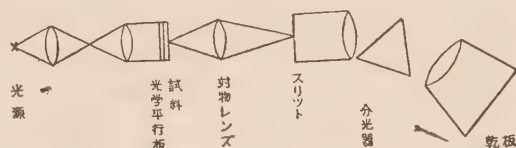
の変化から, step の高さを定量的に測定することが出来る利点をもっている。

3 Fringes of equal chromatic order (FECO) ^{12) 14)}

もし, multiple-beam interferometry の上述のセットのうち, 単色光のかわりに白色光を用いるとすると, fringes of equal chromatic order (FECO) が得られる。この方法は, 2, 3 の点で multiple-beam interferometry よりも勝れた利点をもっており, 高さの正確な測定, 特定の表面構造が elevation か depression かを一義的に決定するためによくつかわれる方法である。

実際には次のような手続で FECO が得られる。先づ通常のセットで特定の構造上を走る multiple-beam interference fringes をつくる。希望の表面構造上を走る一本の干渉縞を選び, これを分光器のスリット上に結像させる。その上で光源を単色光から白色光に切りかえと, 分光器の写真乾板の位置に写真11で1例を示したような, 数本乃至十数本の相似形の干渉縞が得られる。これが fringes of equal chromatic order で各 fringes の t/λ は constant である。

FECO を得るための optical arrangement は第7図に略示した如くであり, 実験上の注意として次の諸点があげられる。



第 7 図

1. 光源には単色光と白色光とが容易に切りかえられるような配置をしておく

ことが望ましい。白色光には普通炭素電弧燈を用いる。光源の絞りを小さくして使う。

2. 希望する干渉縞を分光器のスリットに合せ (平行に), スリットの中を成るべく小さくすると sharp な干渉縞が得られる。
3. 干渉縞をスリット上に結像させるためには, 良質のアクロマットレンズが顕微鏡の対物レンズを使う。後者の場合接眼鏡は取りはずす必要がある。
4. FECO を撮影すると共に, 測定基準として, 波長の位置を二重露光しておく必要がある。このためには, 単色光 (mercury lamp) をフィルターなしでそのまま (試料等もセットしたまま) で乾板上に露光する。水銀の3本の線が重ね焼きされ, これより波長位置がわかる。
5. 写真乾板はパシクロマチックのものでなければならず, 可及的高感光度のものが好ましい。
6. FECO をとり終った後に同一乾板の別の位置に, multiple-beam interferogram を撮影しておくと便利である。このためには分光器のスリットを取りはずし, 単色光 $\lambda = 5461\text{\AA}$ で撮影する。

従って実際の手順は, 1. multiple-beam interference fringes を得る, 2. 希望の1本の干渉縞を分光器のスリット上に結像させる, 3. フィルターをはづして3本の波長位置を撮影, 4. 光源を単色光に切りかえて FECO を撮影, 5. 乾板をずらし, 光源を単色光に切りかえ, フィルターをつけてスリット位置を撮影, 6. 分光器のスリットをはづした上, multiple-beam interference fringes の撮影を行うと云う順序となる。

こうして得られた FECO は写真11で見られるように次のような特徴をもっている。

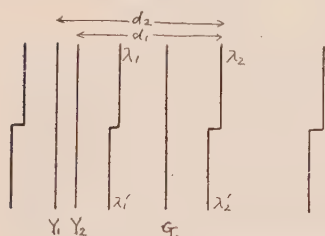
1. 各干渉縞間の間隔が \AA 単位で見てもかなり大きい。

2. 干渉縞はたいへん sharp である。
3. 各干渉縞は微細構造をもっている。
4. 各干渉縞は相似形を呈している。
5. 各干渉縞は multicolour で, dispersion の程度や, 拡大率程度によっては, 一本の縞を violet から red 側まで数千 Å の範囲にまでひろがらせることが出来る。

さて, FECO を高さ・厚さ等の測定, 表面構造の観察に用いると, multiple-beam interferometry の場合よりも次の3点で有利である。

a. 高さの測定

multiple-beam interference fringes の場合, しばしば, 隣接する fringes を reference として使えない場合がある。つまり複雑な表面構造に影響されて, 隣る干渉縞が正しく $\lambda/2$ に相当する位置からずれてあらわれる場合である。これに対して, FECO は唯1本の multiple-beam fringes から得られる干渉縞のセットであるから, reference の干渉縞の必要がなく, 直接に FECO 上のいずれから高さを測定計算することが出来る。計算は次のような



第 8 図

方式による。第8図に示したような FECO が得られたとする。各干渉縞にみられるずれが step の高さに相当する。 Y_1, Y_2, G は夫々 mercury lamp の $\lambda = 5971, 5770, 5491 \text{ Å}$ に相当する。 G を reference とすると Hartman の式 $\lambda = \lambda_0 + \frac{c_0}{d_0 - d}$ は夫々の line に対して

$$5461 = \lambda_0 + \frac{c_0}{d_0} \quad (1)$$

$$5770 = \lambda_0 + \frac{c_0}{d_0 - d_1} \quad (2)$$

$$5791 = \lambda_0 + \frac{c_0}{d_0 - d_2} \quad (3)$$

と書きかえられ, これら3式から

$$\lambda_0 = 5461 - \frac{d_2 - d_1}{\left\{ \frac{d_1}{309} - \frac{d_2}{330} \right\}} \quad (4)$$

が得られる。 d_2, d_1 は図示の如く, 夫々 G line と Y_2 及び Y_1 line との乾板上の距離である。従ってコンパレーター上の測定値を(4)式に挿入して λ_0 が得られる。従って(1)式から $\frac{c_0}{d_0}$ が得られ, (2)乃至(3)式から d_0, c_0 が得られる。次に G 近くにある2本の干渉縞を選び図上に示した4つの位置 $\lambda_1, \lambda_1', \lambda_2, \lambda_2'$ をコンパレーターで読み, 夫々の位置の $d_0 - d$ を出す。こつで d_0 は G の位置, d は夫々の位置で G line の左側を+, 右側を-とする。この値から $c/d_0 - d$ が得られ, 夫々の位置の λ の値が Hartman の式から得られる。これを夫々図のように $\lambda_1, \lambda_1', \lambda_2, \lambda_2'$ とすると希望の step の高さ t は

$$t = \frac{1}{2} \left\{ \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (\lambda_1 - \lambda_1') \right\}$$

で計算出来る。FECO による step の高さの計算は, reference fringes をつかわないだけ, multiple-beam fringes よりの測定より正確な値が得られる。

b. 凸凹の決定

ある構造が hill であるが valley であるかは, multiple-beam interferograms からは一義的には決定出来ない. 多数の interferograms を撮影して始めて解釈出来る. ところが FECO を用うれば, その構造上を走る FECO が spectrograph のどちらの端に bend するかで一義的に判定することが可能である. hill 上を走るとき FECO は violet 側に bend し, valley の場合 red 側に bend する.

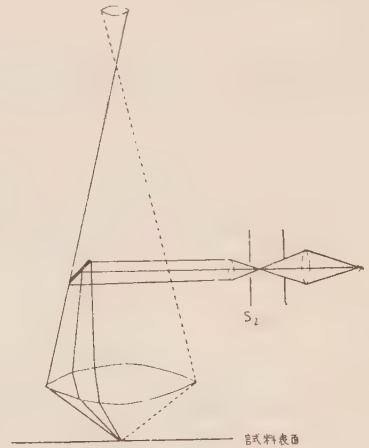
c. その他

FECO を用いて表面上の小さな slop の角度, birefringence 等を測定することも出来るが詳細は文献 12 を参照.

4 Light-profile microscope

ここでいう light-profile microscope とは Tolansky が 1952 年に発表したもので¹³⁾, 所謂 Smaltz の光切断法¹⁰⁾の改良である. 光切断法の場合, レンズの絞りを全開してつかうことが出来ず, スリットの線が暗い物体上に輝く線としてあらわれるため見難く, 且つ 400 倍以上の倍率が使えないと云った欠点があったが, light-profile microscope ではそれらの欠点がとり除かれる. この方法によると $\lambda/2$ 以上の高さの測定が可能で, 且つ FECO の場合のように一義的に, 構造の凸凹を決定出来る利点がある.

その原理は極めて簡単. 階段上に落ちる手すりの影は, 斜光線の場合, 各段毎にずれてあらわれる. このずれは入射角と各段の高さで決定される. この原理を顕微鏡に応用するわけである. 実際には第 9 図で示したように, 顕微鏡中の反射ミラーを中心からずらし, S_2 の像が試料表面上に 45° で投影するような位置におく. (従って oblique-illumination 装置をもった反射顕微鏡が必要.) 光切断法の場合, S_2 にはスリットがつかわれるが, light-profile microscope では, ワ이어をつかうかあるいはガラス板上に線をひいて用いる. したがって白乃至灰色の地の中に黒い線としてあらわれる. 写真 12 でこの方法で撮影した顕微鏡写真の 1 例を示す. 写真で明らかなように, ワ이어乃至ガラス板上の線が表面構造上に重なって撮影され, 且つ表面構造の地形に応じて, ずれたり bend したりしてあらわれる. このずれの量が step の高さに相当し, 倍率と写真板上で測定したずれの量から, 実際の高さ等が計算出来る. 又どちら側にずれるかでその構造がへこみか凸起かを一義的に決定出来る. この方法によれば, 倍率の高い対物レンズ, 更に油浸レンズまで使用することが出来, 測定可能の最小量は光の波長の約半分迄である. もし一本の線のかわりに数本乃至多数の平行な線を S_2 のガラス板上にきざんでおけば, multiple-profile が得られ, 表面構造の地形の判定に大変便利である. 特に各種機械部品の表面仕上の観察などには, この方法は, 便利であろう.



第 9 図

5 Optical Shadow casting method

電子顕微鏡では, 物体のコントラストを高めたり, 高さを測定するために shadow cast-

ing がよくつかわれる。同様の方法を光学顕微鏡に応用したのがこの方法で、 1μ 以上の大きな量を測定するのに使われる。

この方法は、原理的には電子顕微鏡の shadow casting と同じであるが、金属を斜に蒸着させるかわりに、光を斜に投射する点で全く異っている。但し、顕微鏡下の物体に光を斜に投射しただけでは、極微細な粒状の表面をもった物体でないかぎり、step のところに影をつくることは出来ない。そこで人工的に、物体表面に極微細な粒状構造をつくる必要がある。このためにはまづ試料表面を silvering し、その上でこの表面を王水蒸気中にさらす。こうして得られた試料を反射顕微鏡下で、一定の角度をもくた斜光線を用いて観察すると、step のところに影が出来る。この影の長さ、倍率、及び入射角から高さが計算出来る。この方法によれば最低 1μ 程度の高さまでは測定出来る。しかし精度は高いものではないことは言うまでもない。

6 む す び

以上に、Tolansky の教室で使われている、物体表面の微細構造の、高さ、深さ、厚さ等の量を測定する各種の方法を述べた。multiple-beam interferometry, FECO によって数 \AA から $\lambda/2$ 乃至それ以上まで、高精度をもって測定することが出来、light-profile microscope によって $\lambda/2$ 以上の量を、optical shadow casting 法によって 1μ 以上の量を測定することが出来る。更に通常の two-beam interferometry や市販の干渉顕微鏡を用うれば、数百 \AA から数千 \AA 位迄の量を測定出来る。つまり、これらの諸方法を併用すれば普通の結晶の一結晶格子の大きさ乃至それ以下からはじまって、その千、乃至数万倍迄の量までの全領域を完全にカバーすることが出来るのである。しかもこれらの方法は、いづれも、電子顕微鏡の場合のように高額の実験費を必要とするものではなく、僅の設備と費用とをもって電子顕微鏡以上の高精度の測定を行うことが出来る。まことに便利な方法であると考えよう。この方法が完成されてはじめて、例えば、結晶成長や etching などの mechanism を結晶格子の単位で実証し、論ずることが出来るようになったのである。これら基礎分野のみならず、工学方面での応用分野でも、これらの方法は、広い活用の道が存するであろうと信ずる。

謝 辞

滞在2年の間、種々の指導・激励を仰ぎ、又著書よりの写真・図等の使用を心よく許された、Royal Holloway College (University of London) の S. Tolansky 教授に深謝する。写真6, 7は Butterworths Sci. Publ. の好意により Verma: Crystal Growth and Dislocations より転載したものである。

文 献

1. Airy: Math. Tracts. (1831) p. 381.
2. Boulouch: Journ. de Physique **5** (1906). 789,
3. Fabry & Perot: Ann. de Chim. et de Phys. **12** (1897). 459.
4. Forty, A. J.: Phil. Mag. **43** (1952), 43, 72, 377.
5. Griffin, L. J.: Phil. Mag. **41** (1950). 196.
6. Heavens, O. S. & Pandeya, D. C.: Nature **181** (1958). 1394.
7. Joshi, M. S.: Ph. D. Thesis (London University) (1959).
8. Sunagawa, I: Journ. Min. Soc. Japan **3** (1958). 543.

9. " : Min. journ. (Japan), **3** (1960). 59.
 10. Smaltz, G. : Technische Oberflächenkunde, Springer, Berlin (1959).
 11. Tolansky, S. : Phil. Mag. **35** (1944). 120, 179 etc..
 12. " : Multiple-beam interferometry of surfaces and films, Clarendon Press, Oxford (1948).
 13. " : Nature **169** (1952). 445,
 14. " : An introduction to interferometry, Longmans Green & Co., London (1954).
 15. " : Microstructures of diamond surfaces, N. A. G. Press, London (1955).
 16. " : Journ. Electronics & Control **4** (1958) 63.
 17. Tolansky, S. & Bhide, V. G. ; Jour. de Chim. Phys. (1956). 563.
 18. Tolansky, S. & Omar, M. : Nature **170** (1952). 81.
 19. Turnbull D. T. & Belk, J. A. : Laboratory Practice **1** (1952). 403.
 20. Verma, A. R. : Crystal growth and dislocations, Butterworths Scientific Pub., London (1953).
 21. Verma, A. R. & Reynolds, P. M. : Proc. Phys. Soc. **B66** (1953). 414.
 22. Willis, B. I. M. : Ph. D. Thesis (London University) (1952).
- このうち 12, 14 は multiple-beam interferometry の理論と実際を, 16 は 3 次元顕微鏡全般の概説を, 20 は結晶成長の問題への応用を中心として記述されている。

新 刊

大阪大学名誉教授 仁 田 勇 監 修
理 学 博 士

X 線 結 晶 学

- 上 卷 I 部 X 線結晶学の基礎 II 部 X 線結晶学の応用
B 5・810 ページ ¥. 2,800
- 下 卷 III 部結晶構造解析 IV 部 X 線回折の特殊問題
B 5・1010 ページ ¥. 3,800


電子顕微鏡の理論と応用 Ⅲ

—— 理工学への応用 ——

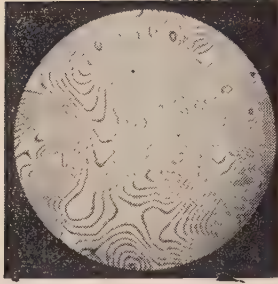
電子顕微鏡学会編

B 5・322 ページ ¥. 2,800

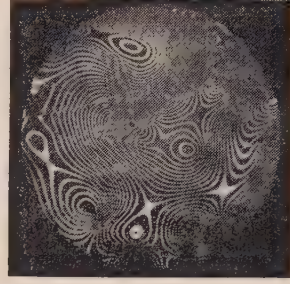
鮮明な写真と図によって、
基礎理論から操作法、応用
までを精細に詳述した全 3
巻よりなる専門書です。

 **丸 善**

東京・日本橋



(a)

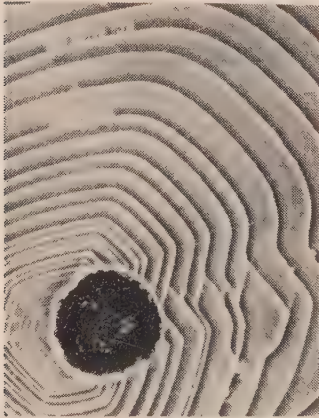


(b)

第1図 雲母劈開片の multiple-beam interferogram a—透過, b—反射, $\times 35$



第2図 セキテツ鉱 (0001) 面の multiple-beam interferogram. $\times 15$

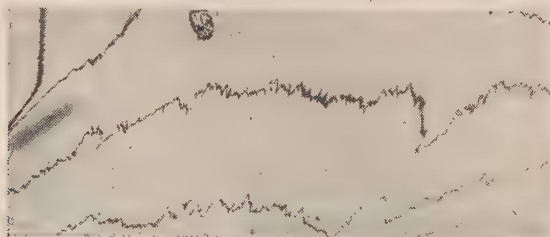


(a)

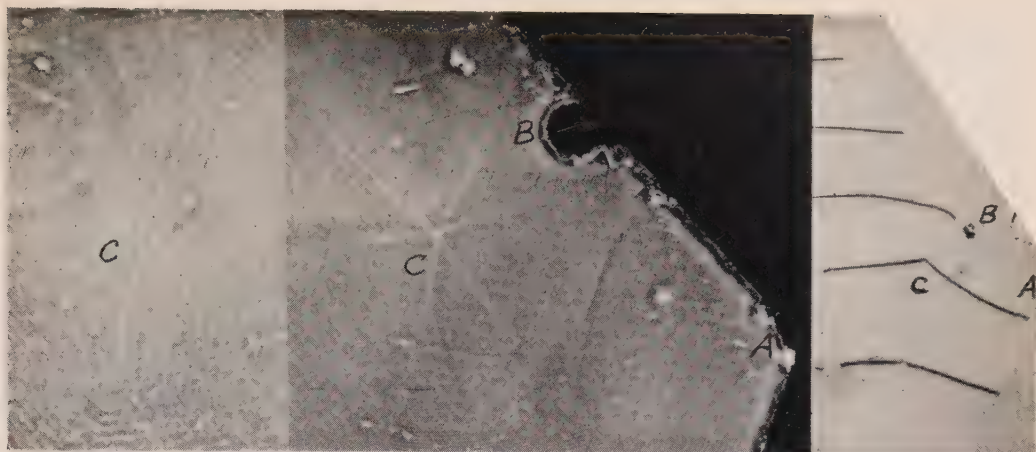


(b)

第3図 SiC (0001) 面上の渦巻成長層の位相差写真 (a, $\times 200$) と multiple-beam interferogram (b, $\times 100$).



第5図 Joshi の thin film method . . . multiple-beam interferogram Quartz の r 面 $\times 100$



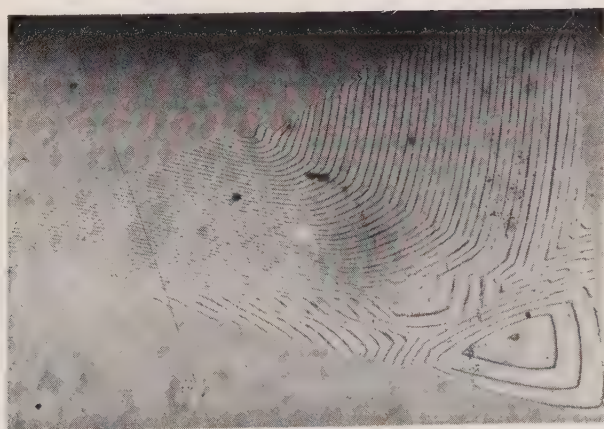
第4図a SiC 上の hexagonal spiral の位相差顕微鏡写真, ($\times 700$) 左側は spiral 中心部の高倍率写真, ($\times 150$),
b 同位置の multiple-beam interferogram ($\times 50$), 記号は夫々相当位置を示す.



第6図 CdI_2 の internal interference fringes (Forty), $\times 800$.



第7図 Stearic acid 上の spiral の位相差写真に multiple-beam internal interference fringes を重ね焼きしたもの. Verma²⁰⁾ より転載, $\times 250$.



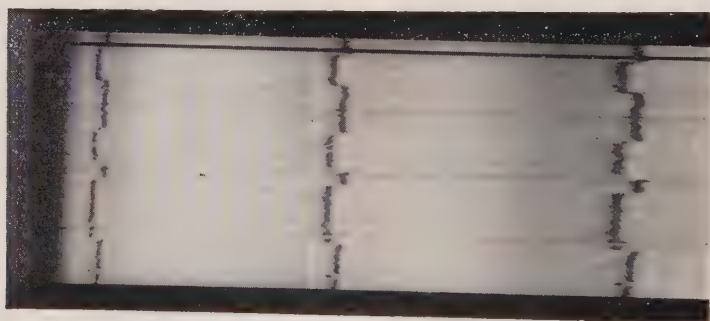
第8図 Quartz r 面の geographical dispersion による multiple-beam interferogram. $\times 20$. Joshi⁷⁾ より.



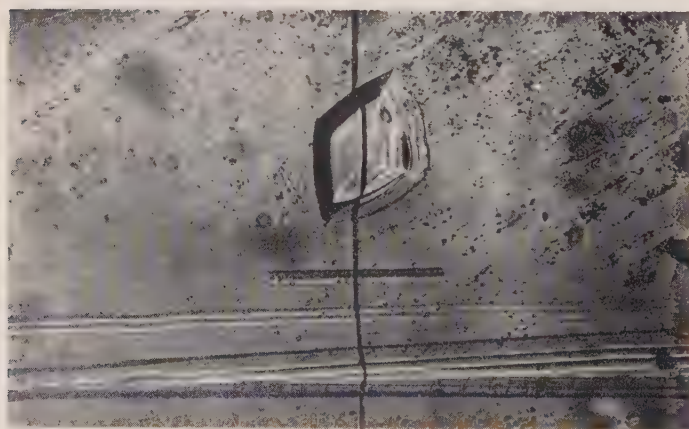
第9図 High dispersion fringes. ダイヤモンドの (111) 面. Tolansky⁽¹²⁾ より。



第10図 Crossed fringes. 9 と同一表面. Tolansky⁽¹²⁾ より。



第11図 FECO. セキテツ鉱面上の構造, 左が red 側。



第12図 Quartz 上の表面構造の light-profile 写真, $\times 400$.

〔トピックス〕

国際フィルム試験

森 本 英 武*

現在、各国のフィルム・メーカー十数社から、数十種のX線フィルムが市販されている。これらのフィルムを用いてX線を計測するには、その測定精度をよくわきまえ、各種フィルムの長所、短所を熟知したうえで、研究目的に応じた最適のフィルムを選ぶことが望ましい。

この目的に応ずるために、国際結晶学連合(I. U. Cr.)の結晶学機械委員会の一企画として、1956年にオランダのGroningen大学において、約40種のフィルムについて比較試験が行なわれた¹⁾。その後のフィルムの性能の進歩を考え、また試験方法を改良して、再び、この試験を行うことが、同委員会により企画され、その実施を名古屋大学物理学教室の上田教授に依頼された。このことは、すでに本誌ニュースに、同教授より報告されたとおりである²⁾。

その後、私たちは内外の結晶学者、ならびにX線、写真各界の専門家の意見を聞いて、具体的に最適と思われる試験方法を考え、昨年末、略々試験装置の設置を完了し、いよいよ本年一年間、試験を実施する運びとなった。この機会に、その試験内容の概要を報告すると共に、この試験に関連して私の興味をひいたX線計測に関する二、三の問題点について触れてみたい。

前回のGroningen試験では、

1. Homogeneity of films.
2. Relative speeds for Mo—K and Cu—K.
3. Fog density.
4. Selwyn granularity.
5. Absorption of Cu—K in films.
6. D—E characteristic curves.

の各種性能が試験された。その結果は、原論文¹⁾に詳細に報告されているから参照していただきたい。われわれは、その結果を検討したが、その中で、特に興味あると思われるのは、感度-粒状度の関係である(第1図)。すなわち、粗粒子—高感度、微粒子—低感度の関係を如実に示している**。

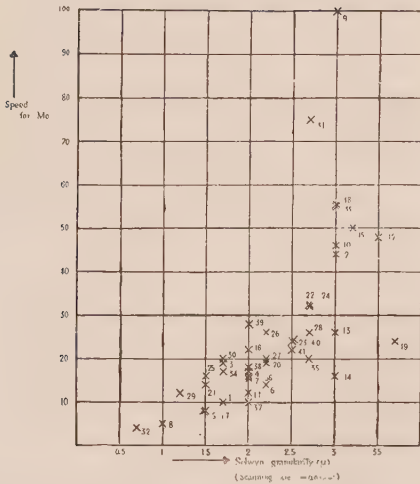
今回の試験では、さらに次の二項目をつけ加える予定である。

7. Fog increase due to aging.
8. Sensitivity for safelights of known spectral distributions.

また、第2項のフィルム感度として、前回の試験ではX線強度は相対的にのみ測定され、最高感度のフィルムの感度を100としているが、今回の試験では、X線強度は、

* 名古屋大学理学部物理学教室

** 粒状度は、濃度Dにも依存する。Groningen試験で、粒状度の測定されたD値は各フィルムにより異なり、 $0.6 < D < 1.0$ であったから、第1図の結果は半定量的なものである。



第1図 Speed—Granularity plots (Groningen test) Showing that fine grain films are of low speed.

Type of film

- | | |
|--|---|
| No. 1. Agfa, Germany : Super Spezial S. F. | No. 13. " : Structurix 6 |
| 2. Ceaverken, Sweden : Textur X Direct. | 14. Guillemint, France : Radioguil |
| 3. Dupont, U. S. A. : Type 502(par speed) | 15. Ilford, England : Ilfex |
| 4. " : Type 504(screen Film) | 16. " : Industrial B |
| 5. " : Type 506 (Fine Grain) | 17. " : Industrial C |
| 6. " : Type 507(PhotoRoe-
ntgen, single coated) | 18. " : Industrial G |
| 7. " : Type 508(Xtra' Fast) | 19. " : Red Seal |
| 8. " : Type 510(Fine Grain) | 20. " : Single coated |
| 9. Fuji, Japan : Industrial, Type 200 | 21. Kodak, England : Crystallex (Code 2) |
| 10. Gevaert, Belgium : Osray | 22. " : Industrex D |
| 11. " : Structurix D7 | 23. " : Industrex S |
| 12. " : Structurix D10 | 24. " : Kodirex(Code 1) |
| | 25. Kodak, France : Definix |
| | 26. " : Kodirex Monocouche |
| | 27. " : Regulix |
| | 28. Kodak, U. S. A. : Blue Brand(Medical) |
| | 29. " : Industrial, Type A |
| | 30. " : Industrial, Type F |
| | 31. " : Industrial, Type K |
| | 32. " : Industrial, Type M |
| | 33. " : No Screen(Medical) |
| | 34. " : Single coated(Blue sensitive) |
| | 35. Lumiere, France : Radiofilm |
| | 36. Manufacturas Fotograficas Espanolas,
Spain : Mafe Ultra Rapida |
| | 37. Perutz, Germany : Type K |
| | 38. " : Type S |
| | 39. " : Type X |
| | 40. Schleussner, Germany : Doneo |
| | 41. Typon, Switzerland : Progress(Ultra Rapid.) |

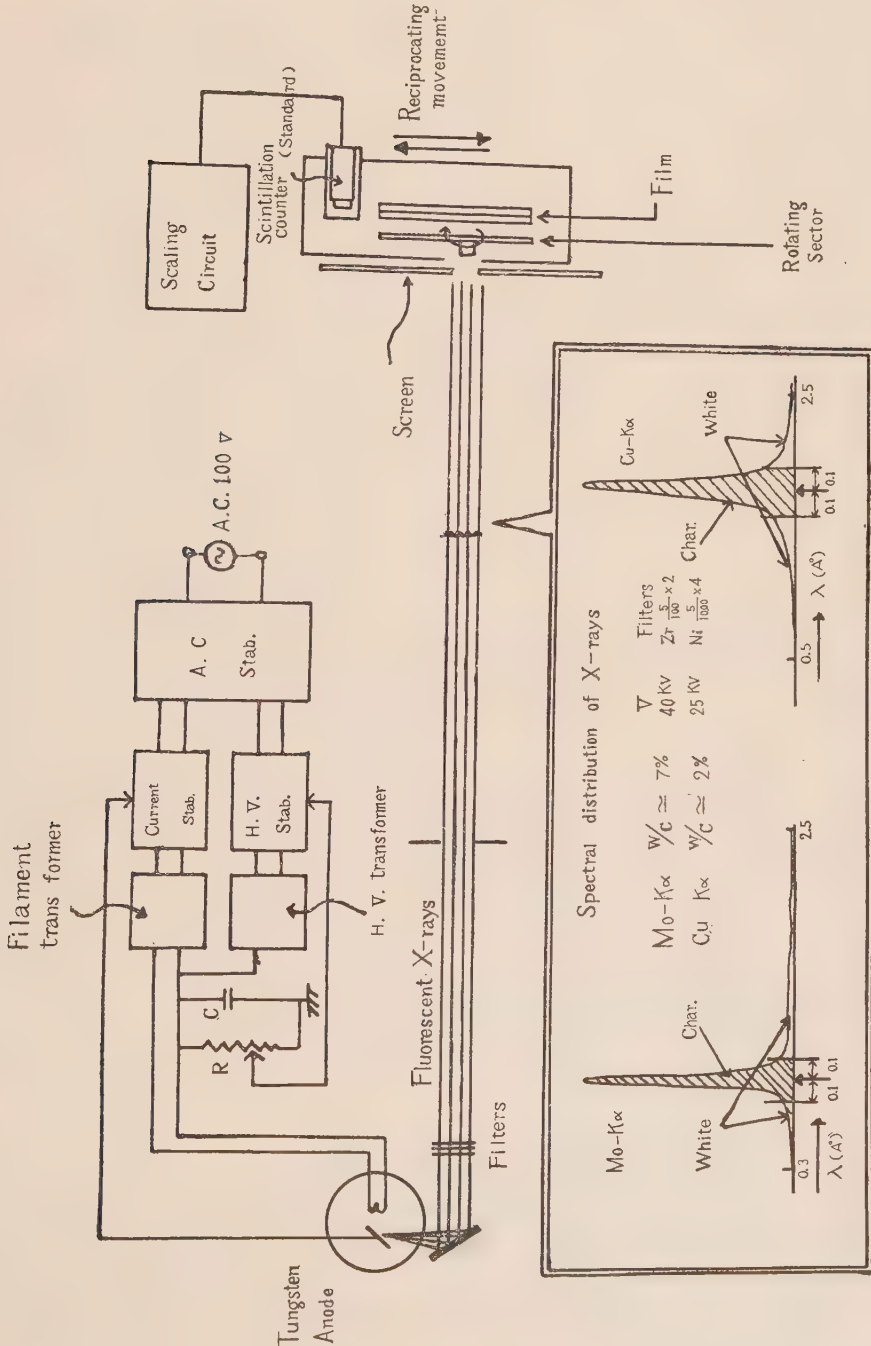
X線光子数/cm² で絶対測定されることになっている。

以上の様な試験を実施するために、

- 1) 時間的に安定、空間的に均一、強力、かつ単色なX線源。
- 2) フィルムの均一性を調べるために一様な露光を行い、また D—E 特性を調べるために階段露光を行う。
- 3) X線絶対強度の測定。
- 4) ミクロフォトメーターによる写真濃度の測定。

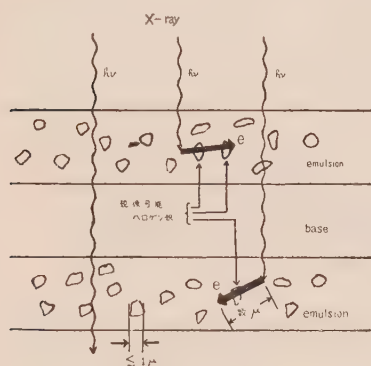
が必要である。私達は Groningen の方法を検討し、さらに I. U. Cr. 委員、国内各氏の意見を得て、第2図のようなX線装置により試験を実施することに決め、理学電機株式会社の技術陣の多大の協力を得て、その装置を製作設置した。特に、蛍光X線の利用によって、管電圧、フィルターを適当に選べば、図示のような単色の線源を得ることが出来、(1)の条件を

良く満足してくれる。また、写真濃度の測定は、two beam method を採用しているナルミ製マイクロフォトメーターを用いることとした。この装置では、Single beam method による種々の困難は除去されているが、two beam method の本質的な欠陥、すなわち、濃度値の較正に充分留意した。

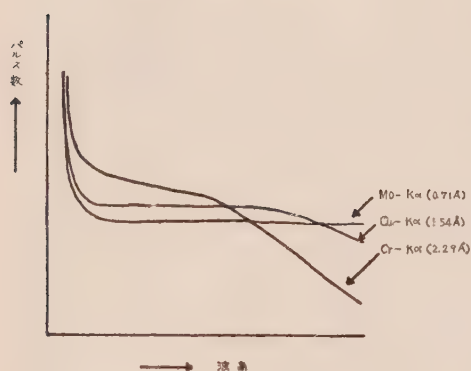


第 2 図 X 線 フ ィ ル ム 試 験 装 置

試料フィルムは、内外十八社から四十二種の提供が決定しており、その大部分はすでに到着している。今年前半において、上記性能を一通り試験し、後半においてさらに、aging を考慮して一部試験を反復し、1962年3月迄に全部の試験を完了し、結果を *Acta Cryst.* に発表の予定である。以上が国際フィルム試験の概要であるが、これに関連して興味ある二、三の問題についてふれておこう。



第 3 図



第 4 図 積分波高分布曲線

第一の問題は、X線の写真感光機構である。その模型は次のように考えられる³⁾。X線光子は、一部乳剤中で吸収されて二次光電子を放出する。二次光電子のエネルギーは、数 KeV 乃至、数十 KeV であろう。この光電子は、乳剤中で数ミクロンの飛程をもち、その飛程中に存在するハロゲン銀粒子を現像可能にする(第3図)。この感光機構は可視光とは全く異なる。むしろ、二次光電子の放射方向を無視すれば、電子線の感光機構⁴⁾と同一であると考えられる*。

X線フィルムの種類は多く、その乳剤の詳細においては千差万別であろうが、この模型の上にたてば、解像力の問題、感度の問題等について明瞭な方向が与えられる。われわれは、フィルム試験の結果を、この模型の上にたって総合的に解釈してみたいと思う。

第二の問題は、X線の絶対測定の問題である。シンチレーション・カウンタを用いれば、(1)波高選別、(2)計数回路の時定数、を適当にすれば、入射X線光子を100%計数可能の筈である⁵⁾。シンチレーターとして Harshaw の NaI (Tl)、光電増倍管として Du Mont 6291 を用いてわれわれが得た積分波高分布曲線(第4図)は、Cu—K、Mo—K に

対しては、雑音**とX線パルスの完全な分離を示し、時定数の許す限り絶対測定が可能なことを示している。

最後に、今迄種々御討議、御協力いただいた諸先生諸氏に深く感謝し、フィルム試験の実施にさらに会員諸兄の御忠言を期待しつつ稿をとじます。

文 献

- 1) *Acta Cryst.* 9 (1956) 520.
- 2) 上田：日本結晶学会誌 1 (1959) 56.
- 3) Mees: *The Theory of the Photographic Process* Chap. 9.

* われわれは、予備実験において、電子線が $1\mu^2$ あたり1電子で $D \sim 1$ を得るに対応して、 $1\mu^2$ あたり吸収X線1光子で $D \sim 1$ を得ている。

** この雑音は、大部分光電増倍管によるものでなく、X線パルスのバックキックによるものと思われるので、さらに改善可能と思われる。

R. H. Herz : Phys. Rev. **75** (1949) 478.

4) 森本 : 応用物理学関係連合講演会講演 第6回 (1959年4月), 第7回 (1960年4月).

5) W. Parrish & T. R. Kohler : Rev. Sci. Inst. **26** (1955) 367, **27** (1956) 795.

P. J. Black & J. R. Forsyth : J. Sci. Inst. **36** (1959) 392.

日本晶学会誌 III. 1. (1961)

Lang カメラ に 就 い て

加 藤 範 夫*

§1. 前 書 き

Lang カメラに就き何か書けと云う編集委員会からの御注文ですが, Weissenberg カメラや Guinier カメラのように既成の器械がある訳ではないので, むしろ Lang 法¹⁾とも云う可き透過回折写像法 (Transmitted X-ray diffraction Topograph method) の解説をする事とします。

X線回折を通して我々の知り得る知識は要するに

(i) 回折積分強度

(ii) 回折線の形状 (line profile)

の二つです。特に単結晶組織 (みだれ) を研究する場合には, 之等の量を結晶の一点一点から求め, 同時に出来る限り場所的な見通しをよく観測し度い訳です。一点一点と云っても, X線源の大きさ・X線 film の粒度及び回折現象特有の制約にわざわざいされて, 場所的分解能に自ずから限度のある事は止むを得ません。

X線は陰極線と違って Lens 系を持たないので同一光学系で(i)及び(ii)の量を求める事が出来ません。此所に我々が原理的に異った系列の研究手段を対象に応じて工夫しなければならぬ理由があります。回折写像法は(i)の回折積分強度を求めるのが目的です。之に反し, Guinier-Tenuevin 法²⁾や弯曲結晶法³⁾は(ii)の回折線の形状を求めるのが目的で, 原理的に異なります。之を仮に回折線法と名付けておきます。

さて写像法は従来, Berg-Barrett 法と呼ばれていました。それは Berg により始められ, 後 Barrett により金属の問題に応用されたからです⁴⁾。此の方法では結晶表面からの反射線を用いるに反し, Lang 法は透過X線を用る事を特徴とします。以上がX線による単結晶組織研究という立場から見た Lang 法の方法論上の“位置づけ”です。

§2. Lang の装置

Lang の装置は一口に云って, 万能X線結晶 spectrometer です。従って実際の器械は, 仲々複雑ですが, Lang 法の目的という上からは, 普通の単結晶 Spectrometer で充分です。現に小生は日本から持参した古い理研製の単結晶 Spectrometer に, 次に述べる結晶支持装置を付けて実験を行いました。

* 名古屋大学工学部応用物理教室

Lang の装置で最も特徴的な部分は結晶支持装置です。それは二つの部分からなります。一つはあたりまえな Goniometer head (例えば Unicam 製) です。他の一つは此の head を水平の任意の方向に動かす事の出来る台です。此の運動の事を **Traverse** と呼ぶ事にします。此の Traverse によって、結晶を Bragg 条件を満たしたままで動かす事が出来ます。例えば完全結晶ですと、Bragg 条件を満たす角度範囲は普通数秒程度ですから、少くとも又その 1/10 程度の精度で平行移動しなければなりません。此の要求を満たす為に、2 cm 角、長さ 10cm 程度の Block Gauge 用角棒に沿つて動かします。Traverse 台は 20×10cm 程の大きさで、此の上に film 用 cassette を乗せる事が出来ます。Traverse の移動距離は 2.5cm と設計されてあります。

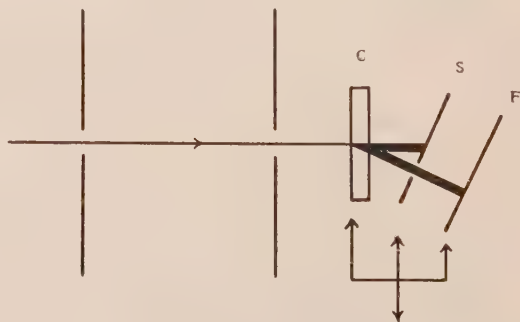
Traverse は gear 系と Selsin-Motor の組合わせで行います。移動の距離は小さな機械的計数器を動かして 1/50 耗迄読みとれるような工夫がなされて居ます。此の Traverse 台で後に述べるように、結晶と film を往復運動させるわけですが、夫等はあらかじめ control unit で反転の位置を指定さえすれば、あとは自動的に何度でも往復します。

X線源としては Ag 又は MoK α が好都合で、点又は線焦点である事を要します。後者の場合、対陰極は水平とします。要点は有効な光源が点である事です。色々の改良が可能です。一応単色化の必要はありません。問題は beam の collimation で、よい結果を得ようと思えば 1 分以下の線巾にする事が望ましい所です。此の条件で K α_1 及び K α_2 が試料自身によって分離されます。

Lang 法に於て、装置とならんで重要な役割を持っているものは、高感度・極微粒子の film です。我々は始めは Kodak 社の歯科医用、後に M-type 等を用いましたが、最後には Ilford 社製宇宙線用感光乳材を使用しました。私は途中から理論的な仕事に転じた為、此の film の開発にはあまり従事しませんでした。処方は大体宇宙線の人が行っているものと同じです。Lang は後に Bristol の宇宙線 group の人とよく連絡をしていましたし、彼の云う事は間違いのないと思いますが、現在 Lang 法の場所的分解能をきめているのは、入射 X 線によってハネ飛ばされる二次電子の飛跡で、長さが 2~3 μ だと言う事です。上述の分解能は M-type より 2 倍程良好です。感度は歯科医用 film の半分、M-type の 2~3 倍というのが私の感じです。但し宇宙線 film は取扱いが極めて難しく、現象・定着に半日以上も要する事が大きな難点です。ちなみに Berg-Barrett 法で転位を見た Newkirk⁵⁾ は分光分析用の微粒子乾板を用いたそうです。

§ 3. Lang 法の原理

Lang 法の原理を第 1 図に示します。要点は試料の直後に Slit を置き回折線のみを取出し、之を Slit の直後に置いた film 上に記録します。film と試料は共に Traverse 台の上に乗っていて往復運動をしますから、換言すれば、試料と film を固定して入射 X 線を動かした事に相当します。此のようにして広い範囲の結晶から回折線による写像が得られるわけです。



第 1 図 Lang 法の原理図

C: 試料結晶 S: Slit F: film

F 及び C を同時に矢印の方向に往復運動させる

次に注意すべき2・3の点を述べます。第1に film を試料に出来る限り近づける事です。それは回折線法と異り、写像法では出来る限り回折線の拡がりによる写像のぼけを避け度い為です。第2に slit 及び film は回折線に直角である事を要します。それは film 膜がかなり厚いので(50~100 μ) 回折線が斜め入射すると写像ぼけの原因になります。第3に Traverse の方向は常に結晶平面に平行でなければなりません。それは第1図からわかる如く、回折線が常に細い slit を通る為に必要です。

§ 4. Lang 法の背景をなす回折現象

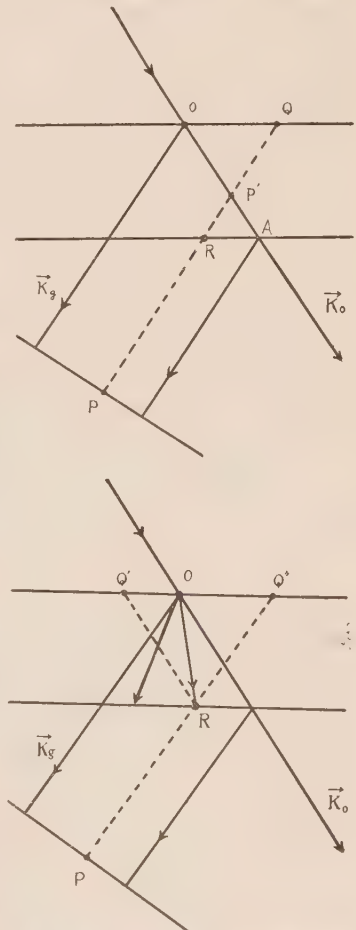
上述の如く Lang 法は写像法です。そこで如何なる写像原理に基いて居るかが問題となります。元々結晶は三次元的な拡がりを持ち、film は二次元的な拡がりしかありませんから、一対一の写像は原理的に無理です。

先ず Traverse 図形と Section 図形を区別します。Traverse 図形は上述の方法で得られたものです。之に対し結晶も film も固定して得られる通常の間折図形を section 図形と云います。Traverse 図形は結晶の各部分から来る section 図形の重ね合せです。従って原理的には section 図形の方が簡単なはずで、第2図に section 図形を示します。

一番単純に考えて——運動学的理論に基いて——入射線が其の進行方向で唯1回だけ Bragg 反射を起すとすれば、第2図(a)で film 上の一点 P に寄与する X 線は P' から発するものです。従って Section 図形は一応 \overline{OA} の写像を示す事になります。又 Traverse 図形では P に寄与する X 線は \overline{QR} から発するものとなります。

所が事柄は夫程簡単ではありません。我々が取扱う結晶は厚さが 1mm 程度の殆ど完全な結晶です。他方如上の運動的理論が使える範囲は高々 10 μ 程度です。それで動力学的に回折波を考察しなければなりません。残念ながら此の種の事柄は解明し尽くされたとは云えません。特に乱れた結晶の場合は事柄が複雑です。紙数の都合で詳しく説明する事は出来ないので完全結晶の場合に就いて若干述べて見ます。

先ず充分細い(巾 10 μ 程度)完全な平面波が入射したとします。此の場合 X 線のような波動が結晶内を如何に伝わるかという事の理論的な研究は比較的近年の事に属します^{6,7)}。結論を云えば、一種の複屈折現象が起り X 線は二つの波に分れて結晶内を進みます。之を(1)及び(2)の波と呼びます。此の進む方向が波動 Vector の方向とは違った或る方向をとる事も普通の複屈折現象と同じです。進行方向は入射 X 線が Bragg 条件を満たす程度に依存して異なりますが、常に K_0 と K_g の間にあります。此所に K_0 及び K_g は夫々入射波の方向及び Bragg の式から期待される回折波の方向です。若し厳密に Bragg 条



第2図 Lang 法に於ける写像関係
(a)運動学的写像 (b)動力学的写像

件を満たしている場合には、重なって K_0 と K_q の二等分線即ち網平面に沿う方向に進みます。実際には入射 X 線は完全な平行光線ではあり得ないので K_0 と K_q の間を(1)及び(2)の波は蔽いつくし、結局に於て 2 図(b)に示す如く、一定の巾の回折線が得られるわけです。従って見かけ上、運動学的考察と全く類似してはいますが、実は film の一点 P に寄与する波の道筋は全く違います。点 P に対し $\overline{OP'}$ 全体が関係します。従って Traverse 図型では三角形 RQ/Q'' が P に寄与します。又更に重要な事は P に寄与する X 線は前述の(1)の type と(2)の type の二種類だと云うことです。

之等の事は精度の低い実験の場合には夫程重要な意味を持たなかったわけですが、充分細い X 線を用いて、回折線の巾の微細な点迄調べられる段階では、かなり重要な事柄です。詳しい事は他の機会にゆずりますが、観測された諸事実は上述の考察を裏づけています。特に回折線の中に細い Pendellösung fringe⁹⁾の現われる事は、上述の(1)と(2)の波の間に位相関係がある事を示し、入射線が単純な平面波とは考えられず、むしろ球面波と考える可き事を物語って居ます⁹⁾。

結晶が乱れている場合には事柄は更に複雑です。先ず上述の(1)及び(2)の波の進む方向が結晶の乱れた所で曲ったり波の位相が変わる事を考えなければなりません。事実 Pendellösung fringes が曲る事が観測されています。又結晶が著しく乱れた領域では複屈折という概念が許されなくなり、むしろ散乱と考える可きでしょう。Lang 法を詳しく検討するには、之等の事柄が更に深く理解されなければなりません。何れにしても Lang 法が結晶組織の研究に有力な手段を与えたと共に、夫に必要な“X線結晶光学”の研究を刺戟した功績は大きいという可きです。

文 献

- 1) A. R. Lang: Acta Met. **5** (1957) 358; J. App. Phys. **29** (1958) 597; Acta Cryst. **12** (1959) 249.
- 2) A. Guinier and J. Tennevin: Acta Cryst. **2** (1949) 133.
B. D. Cullity and C. A. Julien: J. App. Phys. **24** (1953) 541.
- 3) H. Lambot, L. Vassamillet and J. Dejace: Acta Met. **1** (1953) 711. ibid. **3** (1955) 150.
N. Kato: Acta Met. **5** (1957) 237; ibid. **6** (1958) 647.
- 4) W. Berg: Z. Krist. **89** (1934) 286; Naturwissenschaften **19** (1931) 391.
C. S. Barrett: Trans. AIME. **161** (1945) 15.
- 5) J. B. Newkirk: J. App. Phys. **29** (1958) 995; Phys. Rev. **110** (1953) 1465.
- 6) M. von Laue: Acta Cryst. **5** (1952); ibid.
H. Wagner: Z. Physik. **146** (1956) 127.
- 7) N. Kato: J. Phys. Soc. Jap. **7** (1952) 397; Acta Cryst. **11** (1958) 885. ibid. **13** (1960) 349
- 8) N. Kato and A. R. Lang: Acta Cryst. **12** (1959) 787.
- 9) N. Kato: Z. f. Naturforschung **159** (1960) 369; Acta Cryst. in print.



学会の思い出

森 本 信 男*

1957年9月から3年間、私は合衆国のWashington D. C. にある Carnegie Institution of Washington に属する研究所の一つ、Geophysical Laboratory で鉱物学の研究をおこなってきた。この研究所は物理化学的方法を用いて岩石や鉱物を研究する目的でつくられ、現在では、珪酸塩鉱物や硫化鉱物などの高温高压の下における相平衡の研究を主としておこなっている。C. I. W. が合衆国で初めてのX線構造解析の論文となった Chalcopyrite の研究 (1917) のための研究費をだしたということ以外に、この Geophysical Laboratory と結晶学の関係は古く深いもので、1919年に Cornell 大学を卒業した Dr. R. W. G. Wyckoff がその所員として (1920—1926)、合衆国における結晶学発展の pioneer 的役割をはたしたのである。その伝統は Dr. G. Tunell (現 California 大学教授) により受けつがれて第二次世界大戦にいたり、現在では、Dr. G. Donnay と彼女の夫の Prof. J. D. H. Donnay がこの研究所に関係しており、空間群論の拡張、珪酸塩や硫化物の構造決定や双晶理論の発展などに与えた研究をおこなっている。私はこの研究所で、珪酸塩や硫化物をわかった条件で合成し、その結晶学的性質を研究してきたのであるが、その話はよそにゆづり、ここでは合衆国の結晶学会や Cambridge での国際会議について思い出すことを拾ってみよう。

合衆国の結晶学会は American Crystallographic Association (略して A. C. A.) といって、Society でなく、自分たちの雑誌ももっていない、そんなことが原因するのであろうか、年一度の meeting は会員にとって非常に重要であるとともに、楽しいもののように感じられた。また、その創立が比較的新らしいことによるのであろうか、年会の雰囲気も合衆国の地質鉱物学会にくらべて、ずっとくだけており、アメリカ的である。年会は大学の夏季休暇の始まった6月末から7月頃に、大学を借りて、一週間つづけておこなわれる。夫婦同伴はもちろん、休暇中の子供達をひきつれ家族一同で、遊覧を兼ねて学会に出席する人達が多い。学会中は、結晶学者ならぬ奥様方や子供たちのためのプランは完全で、年会開催地に住む結晶学者の奥様、令嬢がたが hostess になって見学や遊覧に案内し、結晶学者たちに後顧の憂いなく活躍してもらえるようになっている。

Ithaca の Cornell 大学で開かれた 1959 年の年会のことである。氷河で削られてできた美しい finger lake の一つ “Cayuga Lake” のほとりの restaurant に行くと、親しい S 氏が奥さんと女の子二人でできていた。話のついでに、何処に滞在しているか尋ねたところ、その restaurant から数哩離れたキャンプ場にいるとのこと。家族とキャンプして野外を楽しみながら年会に出席するという。安くてすばらしい方法を思いつく頭の良さに感心した次第である。

年会中の evening は smoker (一種の懇親会)、会社による reception や A. C. A. Dinner とほとんど毎日つまっている。そのなかで、もっとも重要なのが A. C. A. の Dinner で会費は 5\$ 程度である。party になれた人達の集まりであってみれば、固からず柔らかすぎず、そのかけひきはまことに見事である。Dr. McLachlan の天才的な toastmaster ぶりは印象的であり、熱をおびてくると Dr. Harker のピアノや Prof. Donnay の独唱がとびだしてくることもある。また一面では、ソ連が Spu-

* 東京大学理学部鉱物学教室

tonik Iを打ち上げ合衆国の混乱が甚だしかつた1957年の年会の Dinner Party のように、テレビを会場にもちこみ、Eisenhower 大統領の講演を一同傾聴して、不安感を露骨にただよわした素直さを、もってのものである。

A. C. A. の学会で特に目立つこと（日本でみられないこと）は女性結晶学者の活躍である。A. C. A. 女性会員の数は全体の5～6%とのことだが、一騎当千の人が多いのである。例えば、Dr. Elizabeth A. Wood は1957年の A. C. A. の会長であった。1960年の初めに Washington D. C. で開かれた年会では、chairman は全部女性によってしめられた。上にのべた Dr. E. A. Wood をはじめ、Drs. Moony Slater, G. Donnay, I. Karle など6人の chairman ならぬ chairwoman(?)により meetingが進められた。討論はきわめてなごやかに進み、program 委員の見識と、女性結晶学者の層の厚さに感心した。

合衆国では、結晶学会に限らず一般に学会の年会は、東部の諸都市で行なわれることが多い。無論、東部に住む会員が圧倒的に多いからであろう。しかし、西部に住む人たちにとっては、たとえ飛行機に乗るにしても、往復200ドルを使って3000哩の大陸を横断することは大変なことで、特別の用事のあるボス以外はあまり出席しない。多分、西部の人達は別の会合をもつのであろうが、くわしいことは知らない。したがって、日本にいる時から会いたいと思っていた西部に住む結晶学者、鉱物学者のなかには、在米中に会うことができなかった人が少ない。

ヨーロッパから合衆国に帰化した仲のよい地質学者が、私に尋ねたことがある。「何故みなが学会にゆくか知っているか？」あまりにわかりきった質問に不思議そうにしている私に、「よりよい job を探しにさ」とこともなげにいて説明してくれた。これは、合衆国の学会（地質学会に限らない）の一面を非常によくとらえている。ボスというボスと握手し、自分の仕事を説明して、自分が如何に有能な社会人であり、研究者であるかを印象づけて chance をつかもうとすることが、若い人達が学会に出席する主な目的である。この傾向は、合衆国以外の国から帰化した若い研究者の間に特に強い。たしかに合衆国では宣伝が必要であり、特に帰化した人にとっては絶対に必要で、やればそれだけの効果があがるのである。ヨーロッパから渡ってきて、その「ガメツさ」のために一部から嫌われながら、大きな大学の教授に若くしてなった例が少なくない。しかし、そのような「ガメツさ」を国外で発揮することは、日本人にとっては、不幸にして、なかなか困難のようである。

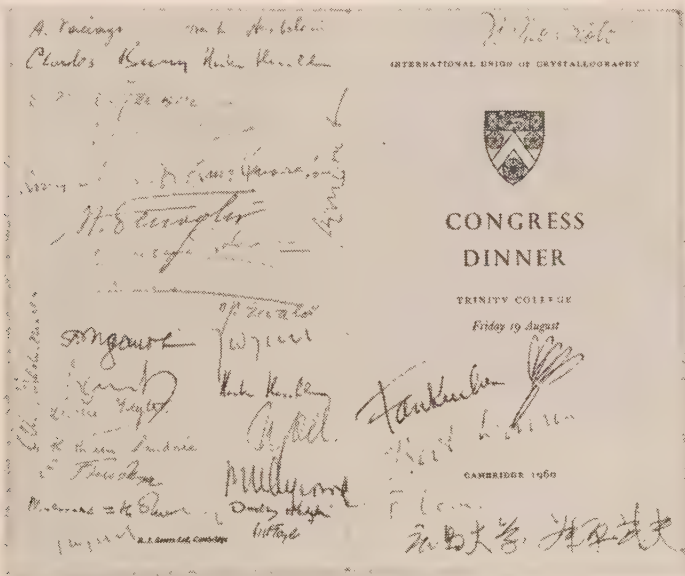
3年間の滞米生活も無事終了して、1960年の7月末にヨーロッパに渡り、Cambridge での I. U. C. の第5回国際会議と Copenhagen での第21回国際地質学会に出席する機会をもった。I. U. C. の国際会議は3年に一度、国際地質学会は4年に一度、したがって二つの会議が同じ年にあるのは12年に一度のことで、このような機会にめぐまれたのは、まことに幸運であるといわなければならない。実際は、幸運すぎて(?)、二つの会議が全く同じ日に Cambridge と Copenhagen で開かれ、同じ期間だけつづいたのである。止むなく前半は Cambridge で過し、Symposia は詰めて、彼半は Copenhagen に行くことにした。

Cambridge での国際結晶学会議の印象を、一言でのべることは困難である。1200名の結晶学者が世界中から集まり、7つの講義室を使って平行に session を行なうのであってみれば、国際会議に始めて出席した私が、いささか興奮したとしても、とがめる人もあるまい。すでにヨーロッパ地方を旅行してきた後で、疲れもあり、あまり欲ばらずに、(1)国際学会の運営や構成を知ること、(2)鉱物関係の session を中心に出席すること、(3)Cambridge 大学の見学と私なりの目標をたてて努力したが、今になってみると、ずいぶんから回りをしたという気がする。それは、私の不勉強や語学力の問題というより、国際学会のもつ特殊な雰囲気になれなかったためと、自らを慰めている次第である。それに、このような会議で、いつもいろいろと教えて下さる Donnay 夫妻が都合で欠席されたことも、私には残念なことであった。

英語、ロシア語、ドイツ語、フランス語さらに日本語で、お国自慢から蛋白質の話にいたるまで、あるところでは早口で、あるところではゆっくりと、話しているそんな wine party の雰囲気も国際学

会に特有で、そんな中で、自分のペースで必要なことだけを落さずに聞き、しやべり、適当に動きまわることには相当の習練を要することである。ともあれ、Cambridge 大学を見学し、鉱物学教室にならべてあった美しい結晶模型の数々と、化学教室でのヘモグロビンの巨大な模型は、Sir Lawrence Bragg の講演 “The growth in the power of X-ray analysis” を現実のものとして示し、印象的であった。

Cambridge では、1000 名以上の人が一堂に集まって dinner をとることはむずかしいらしく、Special Congress Dinner は二日にわたって、いくつかの College で行なわれた。私の割りふられたところは、Trinity College で仁田、藤原、小川教授や小川博士と一緒にであった。この College は Cambridge でも、もっとも大きい College の一つで、Newton, Macaulay, Thackeray の外 Bacon や Tenyson、最近では Rutherford やインドの Nehru がこの College の卒業生または tutor であったとのことである。誰がどのように決めたのか、table の位置は予め決められてあった。私は小川教授と同じ main table で、中央には I. U. C. の新らしく会長になる Prof. Ewald、その両側に Prof. Lonsdale, Prof. MacGillavry がすわり、さらに会長の Prof. Wyart, Dr. Taylor, Prof. Belov, Prof. Zhdanov, Dr. Harker, Prof. Amoros, Dr. Hodgkin など御夫人たちがまじって位置している。Dinner なかばに、誰ともなく menu に署名してまわしだした。よき souvenir として持って帰ったのが写真のような menu である。



物性研究所の紹介

三宅 静雄*

戦後諸外国の科学技術の進歩にはめざましいものがあり、各方面にわたって我が国の立遅れが、憂慮されていたが、原子力関係の研究は時代の脚光をあびてかなりの規模で発足し、また原子核研究については、1955年全国研究者の要望が結実した原子核研究所が設立された。一方、現代の科学技術に広汎な影響をもち、また進歩が著しい、物性の物理的研究については、わが国は数においても質においても相当の人材をもちながら、設備の貧困と老朽、研究費の不足、組織の欠陥などのため、研究成果が跛行的であり、このままでは、世界的水準からの決定的な立ちおくれの状態に放置されることが明らかで、何と

* 東京大学物性研究所

かこの危機から脱しなくてはならぬとの声が、1950年の頃から有志の間でささやかれていたが、学術会議物理学研究連絡委員会の中に小委員会が設けられ、51年1月以来、わが国の物性研究の将来についてきわめて熱心に討議が開始された。その結果、現在の段階では、十分な設備と相当の規模をもつ研究所を設立するのが適当な方策であるとの結論に達し、その趣意書は4月の学術会議総会によって承認され、5月政府にその旨が勧告されることになった。この趣意書の一部には、つぎのように唱われている。

“この研究所は、物性物理学のうち、固体物理学を中心とする分野においてその基礎的研究を高度の総合性をもって行うに足る充分な近代的設備を整えた中央的研究機関であることが望まれる。ここにおいて物性の研究を強力に推進するとともに、全国の研究者がその設備を利用してその研究を徹底的に遂行することを積極的に援助し、さらにわが国の工業技術の要求から生れる問題を根本的に究明してゆくならば、すでに優秀な萌芽をはらむわが国の物性物理学の水準は劃期的に高められ、それがわが国の工業技術の後進性を脱却する根本的な契機となることは期して待つべきであろう。われわれはこのような物性研究所の設置がわが国の現状に照らして適切かつ緊急であることを痛感し、その速かな実現をここに要望する”

さて、その後、この研究所をどこに設置すべきかについて、いろいろの議論の経過があったが、結局1957年3月31日茅誠司博士を初代所長とする東京大学附置の全国共同利用研究所として発足することになった。以後、部門（講座）は逐年拡充され、36年度（1961年）において、当初の計画通り20部門が完成される見込みとなった。下にこれらの部門名および既に在任する教授、助教授名を列記しよう。なお、現在の所長は武藤俊之助教授である。

極低温（大島恵一、永野弘）、固体核物性（菅原忠）、磁気Ⅰ（近角総信、石川義和）、半導体（川村肇、豊沢豊）、界面物性、「井口洋夫」、光物性（牧島象二、塩谷繁雄）、電波分光（柿内賢信、阿部英太郎）、分子（長倉三郎、宮川一郎）、結晶Ⅰ（三宅静雄、細谷資明）、結晶Ⅱ（斎藤喜彦、星埜禎男）、格子欠陥（神前照、小林浩一）、塑性（鈴木平）、放射線物性（大野和郎、小林辰佐）、理論Ⅰ（芳田奎、禮谷忠雄）、理論Ⅱ（武藤俊之助、山下次郎）、誘電体（中島貞雄（ふりかえ））。

磁気Ⅱ（予定） 非晶体（予定） 理論Ⅲ（予定） 超高压（予定）

一方、研究所設置の場所については、当初東京駒場理工学研究所（現在航空研究所）に接する空地が考えられていたが、その後米軍が使用していたハーディー・バラックス（かつての麻布3連隊）が接収から解除され、この土地が新しい候補地として現われて来た。しかも、その間の錯綜した事情のため麻布の土地使用に関する最終的な見込が容易にたたなかったため、建築工事にかかることができず、計画進行上多少の跛行を生じたが、59年の秋より麻布において第一期工事が開始される運びとなり、この工事は60年6月に完成した。それまで、研究所員は航空研究所内に分散して待期していたが、この年の7月から9月にかけて大部分の移転を完了した。11月24日に開所式を挙行し、完成部分の披露を行なった。

さて、ハーディー・バラックスには、もともと9000坪をしめる大建築があるが、この大部分には現在千葉市にある東大生産技術研究所が入ることになり、既に本年2月より移転を開始している、ところで物性研もこの建物の約1/6（約1500坪）を改修して使用し、この中に事務室などの管理部門、工作室、図書室、大型計算機室、非実験部門の所員室などが入る。一方、実験部門の主要部門は新造建築であって、昨年6月に、本棟（地下1階、地上5階）約1000坪、極低温設備を入れるため別棟約120坪が完成した。本年3月には増築が加わって本棟は約1500坪になる予定であって、これは36年度末には2500坪以上になると予想される。

写真1は現在の本棟の姿であるが、これは将来その2倍半以上に右へ向って延びるわけである。この建築は各階の床の強度、換気、配管、配線などについて特別の工夫がこらされている。写真2の正面に見られるいくつかの配管は冷水、温水、圧搾空気、窒素ガス、ヘリウム回収管などであり、この他に各階の廊下に交換樹脂濾過による純水（比抵抗 6×10^6 オーム、普通の水は 10^2 オーム）の蛇口がある。必要に応じて配管の増設できるよう各階を貫通するダクト、および各室の床にピットが設けられている。

また、移動間仕切壁によって暗室の設置、隣室との融通が可能になっている。

実験設備については、35年度までに約7億円投入され、この年までに認められた16部門中の実験講座数14で割ると、一部門当5000万円になっている。ただし、この予算には低温設備（液体ヘリウム、水素、窒素など）、パラメトロン使用大型計算機、工作設備などの共通的な大物が含まれており、これらを除けば一部門あたり約3500万円である。この数字は、まだ当初の計画には達しないが通常の講座新設に較べて画期的な拡充といえる。

物性研全体を通じて結晶学に関係する部門ははなはだ多いが、特に回折結晶学に直接関連するのは結晶Ⅰと結晶Ⅱである。この2部門は、結晶Ⅰが回折結晶学の物理的な面に重点を置くに対し結晶Ⅱは構造的な面に重点を置く点で違っているが、たがいに共通の関心問題があることはいうまでもない。結晶Ⅰの現在の主な目標は(1)回折強度の精密測定による原子散乱因子の再検討、異常分散の研究、(2)複結晶分光機や特殊カメラによる結晶の完全性不完全性の研究、(3)電子回折現象の研究などが含まれており、これらのためX線ディフラクトメーター等の一般的な装置のほか、複結晶分光機、300 KV 高電圧電子回折装置などを持っている。この他に、結晶Ⅱとも協力して、近く物性研内に設置される PC-2 計算機を駆使し、結晶解析における新しい方法の開拓にも参加している。一方、結晶Ⅱは(1)有機化合物、金属錯塩などの結晶構造解析、異常分散の構造解析への応用、(3)相転移（特に誘電体について）の研究が現在の目標である。一般的な装置のほかに、単結晶のX線強度を自動制御で精密に測定する自動記録式X線回折計、自動記録式比熱測定装置、などを備えている。

以上の研究問題には、すでにⅠ、Ⅱの共同企画のものが含まれているが、さらにこれらと別に、東海村原子力研究所で完成されつつある第2号炉（CP-5型）を利用する中性子回折研究のための測定装置の計画が進行中である。

すでにふれたパラメロン大型計算機（PC-2型）は4096長語記憶をもち、演算速度、記憶容量において国産電子計算機の最高位のものであり IBM 704 の性能に匹敵するといわれているので完成の暁（本年春）は構造解析への貢献に相当期待すべきものがあると思う。

以上特に多少説明を加えた結晶Ⅰ、Ⅱ以外の部門にも紹介したい事項はきわめて多いが、これらは別の機会に譲り、最後に物性研が全国共同利用研究所の性格をもつ普通の大きさ点について補足を加えておきたい。共同利用とは何かということについては、各人各様の解釈があるが、物性研が全体として相当に充実した研究設備をもっていることは事実であって、所内のものだけで、これらの設備の手がふさがってしまうということは考えられない。これは当初から所外の研究者の共同を見込んで計画されているのであるから当然である。このような共同利用には、動機、規模、密度などにおいて様々であることが



写真1 将来右方に向って、現在の2倍以上に延長される



写真2 実験室の一例

予想されるが、そのいずれであれ、大事なことは、それらが早く実行に移されて、所内外の研究の実効を全体的に高めることに物性研の存在がいくぶんなりとも寄与できるようになることである。このような目的への一助として物性研では外来研究員制度を設けている。この制度については、この号の別の場所に記されているので御覧願いたい。

新 製 品 紹 介

X 線 マイクロアナライザー

1949年に、フランスの Castaing が idea を出し、その後試作改良が進められて来た X線マイクロアナライザーは、物質の微小部分を非破壊的に分析出来るという大きな特長を有するものである。原理は、電子光学的に作った小さい電子スポットを未知試料の微小部分にあて、そこから放出される特性X線の波長分析をして微小部分の成分分析をする。現在の電子光学技術では $1\mu\phi$ 程度の大きさで、充分に強度のあるスポットを作ることは、それ程困難ではない。普通の金属の場合、電子線衝撃によって起る試料の温度上昇、破壊などもスポットが充分に小さいときにはほとんど問題にならない故、この方法によって 1μ 程度の大きさの微小部分を非破壊的に分析できるわけである。

写真に示すX線マイクロアナライザー、XMA-3型は、電子光学系は日立の電子顕微鏡グループ、X線関係は理学電気、光学顕微鏡はオリンパス光学の協同のもとに日立製作所が製品化したものである。

電子光学系、試料室、光学観察系、X線分光器および検出系、真空排気系の5つの部分から成り立っており、図にそれらの配置の概要を示す。

(1) 電子光学系

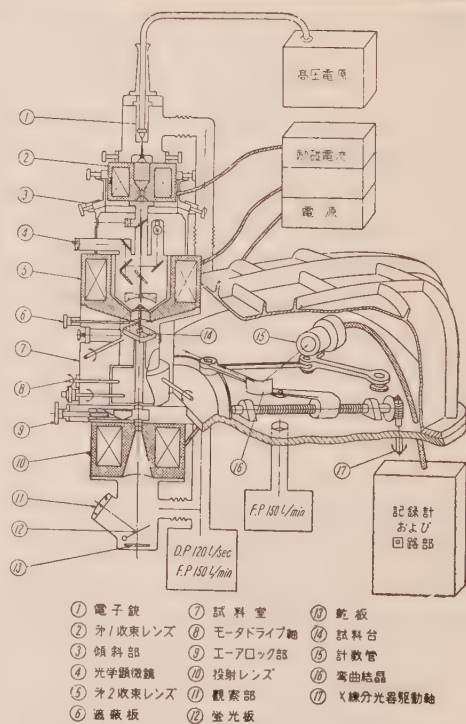
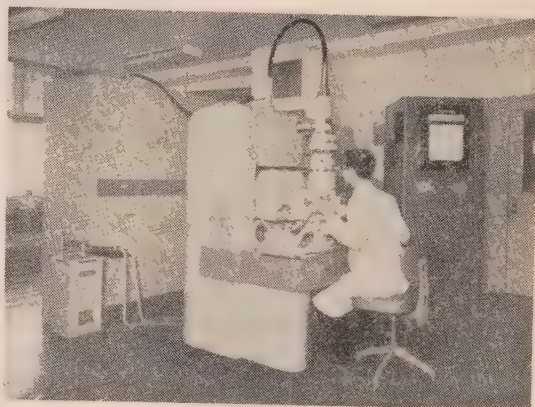
加速電圧 20KV~50KV, 7段切替,

電子レンズ系 第1, 第2集束レンズおよび
投射レンズから成り、投射レンズは軸調整
および、スポットの監視に用いる。

(2) 試料室 10 mmφの大きさの試料を4ヶ,

1 mmφの標準試料を16ヶ取付け、所定のものを光学顕微鏡下にもって来て分析箇所を決定する。

(3) 光学観察系 400倍の反射対物顕微鏡を使用。



第1図 XMA-3形 日立微小部X線分析装置構造図

光学レンズの中央に電子線通路として 1mmφ の小孔がある。

- (4) X線分光器 250 mm の曲率半径にわん曲させた結晶を直進運動させ、検出器は常に集中条件を満足するよう曲線運動する。波長は Å 単位で小数点以下 3 桁まで直読出来る。結晶は LiF , ADP を切替えて使用し検出器は P. C と S. C を直列にした所謂ユニバーサル計数管を使用する。
- (5) 附属装置 Scanning 電源および観察装置を取りつけることにより, Scanning X-ray Microanalyser として使用し, 成分の二次元的分布状態を見ることが出来る。

新 刊 書

World Directory of Crystallographers. 第2版 (1960)

(Dr. D. W. Smits 編 IUCr. 刊行)

この本は世界中の結晶学関係の研究者名簿である。結晶学は時代と共に変わるが、その範囲はかなり広く取っており、本の副題に“.....and of other scientists employing crystallographic methods”と唱ってあるように、固体物理学者や物理化学者なども多数含められ、54国にわたって約3500人の人の名前が載せられている。

この本の編纂に当っては、各国に1人責任者が依頼され、その人々によって、必要なデータは多くの場合、各人から直接に集められた。わが国では渡辺得之助教授がこれに当られた。一国で人数の多いのはアメリカ (879人)、イギリス (492・)、ドイツ (東西を含む) (323人)、日本 (273人)、フランス (155人)、ソビエット (172人) などである。

まず国が ABC 順で分類され、つぎに人名が ABC 順にならべられている。各項目の記載例を下に示そう。ただし(i), (v)……は筆者が入れた。

○Bragg, Prof. Sir (William) Lawrence (i) (1890). (v) MA, physics (U. of Cambridge, 1915).

(v) Resident prof. in the Royal Institution and Director of the Davy Faraday Lab., (v) ROYAL INST. (v) *Inorganic crystal structures, mineral, metal physics, crystal optics, large molecules.*

○Ewald. Prof. Paul P. (i) (1888). (v) Dr. phil, theoretical physics. (U. of München, Germany, 1912). (v) Prof emeritus (v) (P. A. : 19 Fordyce Road, New Milford Conn.). (v) *Crystal physics.*

(i)は生年, (v)は最終学位, その専門と取得の大学その年, (v)は現在の職名, (v)は研究室または自宅の宛名, (v)は研究分野を示している。Bragg の宛名 ROYAL INST はこの名簿上の略号で、内容は別の場所に詳しく書かれている。

上の例でわかるように、この名簿は世界中の研究者についてその宛名を知るにも略歴を知るにもひじょうに便利なもので、一度でも使った人には、もはや手放なせないものになるであろう。すでに述べたように、収容された研究者の範囲はかなり広く取っているので直接結晶の研究に従事する人は忽論、その他の物理学者、化学者、金属学者などに対しても利用価値ははなはだ大きいと思われる。第1版は1957年に発行され好評を博していたが、新版はデータも多くなり、より正確が期されている。

この名簿の購入方法については、阪大理学部物理教室渡辺得之助教授に御問い合わせされたい。

(三宅 静雄)

電子顕微鏡学会編 電子顕微鏡の理論と応用. III. 理工学への応用. 1960年. 丸善発行.

定価2,800円

物質の状態あるいは変化を直接的に捉える手段としての電子顕微鏡は、性能の向上ならびに試料作製の進歩と相俟って、益々その役割を増しつつある状態である。特に日本においては電子顕微鏡の著し

い普及によって、非常に広い分野に互って電子顕微鏡による観察結果が発表されている。多くの分野の研究者によって電子顕微鏡による観察がそれぞれの分野において、大きな成果を示していることは極めて喜ばしいことであるが、その反面必ずしもすべての場合に適正な応用または正しい解釈が行われているとは云えないで、むしろ電子顕微鏡の手法の導入が形式に過ぎると考えられる場合がかなり見受けられる様である。この様な時期に特に電子顕微鏡の理工学に対する応用に関する書物の刊行されたことは、真にその時を得たものである。

本書は電子顕微鏡学会の編輯によって計画された「電子顕微鏡の理論と応用」全三巻の中の第三巻であって、“理工学への応用”という題目の下に編輯刊行されたものである。全三巻を通じて、統一された編輯方針で一貫して居り用語も良く統一されている。執筆者はその方面の権威であると同時に、現在第一線の研究者として活躍されて居る人達である。章、節名と各章の監修者および執筆者とを挙げると、

1. 金属への応用(谷安正)
 - 1・1 特殊技術(西山善次, 清水謙一)
 - 1・2 鉄鋼(西山善次, 清水謙一)
 - 1・3 非鉄金属およびその合金(幸田成康)
 - 1・4 金属結晶の塑性と集合(高村仁一, 西山善次, 藤田広志)
2. 結晶への応用(日比忠俊)
 - 2・1 電子回折に関連する結晶への応用(北村則久)
 - 2・2 電子顕微鏡のみによる結晶への応用(日比忠俊)
3. コロイドおよび粉体(水渡英二)
 - 3・1 エーロゾル(水渡英二, 滝山一善)
 - 3・2 ゼルおよび沈澱(水渡英二, 滝山一善)
 - 3・3 エマルジョン(水渡英二, 滝山一善)
 - 3・4 ゲル(水渡英二, 滝山一善)
 - 3・5 粉体(水渡英二, 荒川正文)
4. 無機材料(久保輝一郎)
 - 4・1 窯業原料(河島千尋)
 - 4・2 無機物焼結体への応用(久保輝一郎, 久高克也)
 - 4・3 触媒(上田隆三)
 - 4・4 セメントおよびガラス(渡辺幸三郎)
5. 有機材料(深見章)
 - 5・1 塗料(塩田良一)
 - 5・2 石ケンおよびグリース(桜井俊男)

非常に広い分野に互る問題を対象とするこの種の書物は一般に写真のられつになる傾向を示すきらいがあるが、本書がその弊に陥っていない理由は、採り上げられている問題が執筆者自身の得た結果を基にしている為である。従って理工学全体の問題をカバーしている訳ではなくて、色々な分野における電子顕微鏡技術の進歩の断面を示しているものと云えよう。理工学に対して電子顕微鏡がどの様に適用されてどんな成果を挙げているかという現状を吾々に知らせて呉れると共に、これから電子顕微鏡を使って研究を始めようとする人達にとっては、適用の仕方、具体的方法などについて多くの有益な指針を与えて呉れる。非常に幅の広い問題を取り上げてまとめるという困難を克服して一応体系的な形の書物として刊行されたことに対して、敬意を捧げるものであるが、更に近き将来に於て、更に広い分野におけるその時の研究の成果を世に示されることを心から期待している。

(高橋 浩)

ニ ュ ー ス

物性研究所の外來研究員制度について

物性研究所は全国共同利用研究所の性格を持ち、共同利用研究費として旅費等を含む若干の予算が与えられています。この予算の実行計画は物性研共同利用施設専門委員会で立案され、その一部としてすでに一昨年来多くの研究会が物性研で開催されていますが、この種の研究活動にまして、所外の研究者が物性研の諸施設を直接利用され、所内外の研究の実効を全体的に高めることは、さらに重要であると考えられています。

このような共同利用にはいろいろの形があり得ます。たとえば、(i)その研究者が自身の研究題目の遂行のため研究の大部分または一部を物性研において行う場合、(ii)所外研究者の間、あるいは所内研究者と所外研究者の間に共同研究題目が成立し、所外研究者も所にある期間滞在して、研究を能率的に促進したい場合、(iii)特に若い研究者が内地留学的な意義も含めて物性研の研究に参加される場合、などが考えられますが、さらにこれらはそれぞれ研究の規模、密度あるいは期間などにおいて各様の形になるであろうことが予想されます。

物性研では、以上のようないろいろの場合があることを予想し、それぞれの研究計画に関連して内外から要望があった場合、大学、官庁、会社、その他の研究機関に所属される外部研究者を所に円滑に受け入れることを可能にするため、下記のような外來研究員の制度を設けております。

1. 客員研究員

研究歴において、大体大学の助教授、教授級の研究者を対象とし、これらの方にかんりの期間（少くとも2～3ヶ月以上）任地を離れ物性研に滞在して集中的に研究していただくのを原則とする。

所の施設の利用、居室の提供については、客員に適わしい便宜を計る。

2. 嘱託研究員

所の研究計画あるいは共同利用研究計画の遂行上必要な研究を嘱託し、同時に所内施設の利用の便宜を提供することを目的とする。（ただし、同じこの目的であっても、客員研究員、および次項にのべる留学研究員になっていただく方がより適わしい場合はそれらの制度を活用する）。

研究期間は一応6ヶ月を期限とするが、延長できる。

3. 留学研究員

主として若い研究者が所属機関の諒解の下に物性研にかんりの期間（1年程度またはそれ以上）留学の形で滞在し、各研究室の一員として所員の指導の下で研究を行う。

4. 短期施設利用

自分の研究題目に必要な測定等のため物性研の施設を利用し、しかもその期間が比較短短期で身分上の処置が特に必要でない場合に相当する。

将来予想されるいろいろの形の共同利用研究は以上の制度の枠内でかなりカバーされるのではないかと考えますが、具体的な必要性が現われれば、さらにその改善、あるいは制度の追加などを考慮することになりましょう。

なお、学振の流動研究員、奨励研究生である場合も所内では上の制度によって処遇します。留学研究員に大学院学生を含めることは、現在の大学院制度と矛盾する点もありますので、現在は一応それを別にして考えています。

大学、官庁、会社の別を問わず、上述の制度を利用されるご要望がある場合は研究題目、研究計画（スケジュールを含む）研究歴をそえて物性研所長宛に申し出いただければ良いのですが、実際には研究内容に関連するいろいろの具体问题がありますので、その前に研究問題に一番関連がある研究室の所員とご相談いただくことが望ましいと思います。

外來研究員を所で受け入れるかどうかは、所員会で、提出されたデータと所内条件を検討して決定し

ます。ただし、この決定には物性研共同利用委員会の意見を尊重いたします。この委員会は3月中旬と6月中旬に開かれますので、申請の時期としては2月末と8月末が一つの区切りになります。しかし、研究計画を速やかに遂行できるよう、これらの中間の時期の申請についても極力適当に処置が講ぜられるよう努力をします。

物性研で研究するため要する旅費、滞在費、および研究費の一部は、個々の申請にもとづき共同利用研究費の予算から支出することが可能です。ただし、会社に所属する研究者にはこれらの経費を所からは支出しないことになっています。

以上の制度は発足したばかりであり、また物性研の建築計画の進行がなお半ばであることなどの事情のため、いままでは特別のPRをしていませんので、まだ十分に活用される段階にはなっていませんが、現在すでに約20人の研究者がこの形によって物性研の研究に参加されています。

この制度、その利用に関するお問合せを歓迎しております。

宛先 東京都港区麻布新亀土町10 東京大学物性研究所

(文責 三宅静雄)

会 報

昭 和 36 年 度 総 会 開 催 御 通 知

本会の36年度総会は下記次第の通り開催致しますから、正会員は漏れなく出席していただきたく御通知申し上げます。当日万止むを得ない事情のため出席出来ない方で、別便にて御送りした委任状をまだ御提出にならない方は至急提出するようお願い申し上げます。

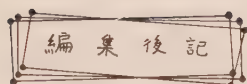
昭和36年3月1日

日本結晶学会々長 藤 原 武 夫

記

日 時 昭和36年4月1日(土) 15時より16時
会 場 東京都新宿区戸塚町 早稲田大学
19号館112号室
議 案

1. 昭和35年度 事業報告
2. 昭和35年度 会計報告
3. 昭和36年度 事業計画
4. その他



先号の発刊は予定より大分遅れましたが、本号は執筆者の御協力の結果ほぼ予定のペースに戻ることが出来ました。次号は7月発刊で次のような内容を予定しています。

(綜説) 合成高分子研究の最近の進歩(仁田勇, 角戸正夫), 中性子回折の最近の進歩(交渉中), (トピックス) 金属相転移の電顕像による研究(西山善次), 格子定数の連続測定(交渉中), 電子線のエネルギー分析(渡辺宏), (談話室) ケンブリッジの記(橋本初次郎), Cowley 研究室の思い出(桑原茂也), 田口稲男氏を偲ぶ(渡辺得之助)

名 簿 訂 正

前回御送りしました名簿の誤植を以下の如く謹んで訂正致します。又その後通知のありました住所等の変更も併せ御知らせ致します。以下は名簿と同じ形式で印刷してありますので、切り取って名簿の該定する所へお貼り下さい。
誤植訂正（太字の部分）

	氏 名	専 門	勤 務 先	現 住 所
誤	五十嵐 貞澄			
正	五十嵐 真登			
誤	土方 洋		京都市左京区吉田二本松町 京都大学教養学部物理学教室	
正	木 方 洋		京都市左京区吉田二本松町 京都大学教養学部物理学教室	京都市伏見区豊石橋町 伏見合同宿舍 224 号
誤	広川作太郎		横浜市小原台 防衛大学	
正	広川作太郎		横須賀市小原台 防衛大学	

住所等の変更

内 田 博	昭島市拝島町 3773 理学電機 K.K. 研究部	
河 合 七 雄		堺市東雲西町 1 の22の 3
沢 口 悦 郎	品川区北品川 6-351 ソニー K.K. 研究所	世田谷区玉川用賀町 3-73 用賀住宅 647
菅 原 忠	港区麻布新亀土町 10 東京大学物性研究所	
鈴 木 平	港区麻布新亀土町 10 東京大学物性研究所	
鈴 木 秀 次	茨城県那珂郡東海村 日本原子力研究所	茨城県東海村長堀住宅 13の 1
高 木 豊		水戸市元山町 3 区西 5625
豊 田 耕 一		京都市右京区川島尻堀町 55
藤 原 浩	広島市東千田町 広島大学理学部物理教室	

日本結晶学会誌 1 号 (第 3 巻 第 1 号)

昭和 36 年 3 月 20 日 印 刷

昭和 36 年 3 月 25 日 発 行

発 行 所

発 行 者

印 刷 所

日 本 結 晶 学 会

東京都文京区本富士町東京大学理学部鉱物学教室内

振替口座 東京 1 3 8 9 7 7

竹 内 慶 夫

第 一 印 刷 株 式 会 社

東京都新宿区西大久保 1-4 5 9

OLYMPUS



オリンパス 偏光顕微鏡 POM

● / 国産最初の傾斜鏡筒採用 ● / ベルトランレンズ・
光学系完全防塵 ● / 上下動範囲の広いステージに自
在回転ステージ取付可能 ● / 反射照明・写真撮影装
置など付属品完備 ● / 倍率 $20\times \sim 1000\times$ ● / 広視野
接眼レンズ採用 ● / ￥175,000



東京都中央区銀座東1-2

オリンパス光学工業株式会社



ソルボンヌ大学教授 アンドレ・ギニエ著

X線結晶学の理論と実際

高良和武・細谷資明・土井健治・新関暢一 訳

20年間にわたり結晶学界の第一線で活躍されているギニエ教授の労作です。考え方は明快、文章は平易、具体的でつとめて数値をあげるなど初学者にとつて得がたい教科書であるとともに専門家にとつても有益な味わい深い名著であります。

—主 な 内 容—

- I. X線の一般的性質
- II. 結晶学の基礎と結晶によるX線の回折理論
- III. いろいろな実験法
- VI. X線結晶学的方法の応用
- V. 不完全な結晶および非結晶質物質によるX線の回折

B5 判 650 ページ

定 価 3,300 円

理学電機図書出版社

東京都千代田区神田台所町 8

Tel. 東京 (291) 7401 代表



結 晶 解 析 に よ る 研 究 に !!

自 動 記 録 式 X 線 回 折 装 置



Geigerflex

最近各研究室においてX線回折法の占める比重は非常に大きくなつてまいりましたがわが国でのディフラクトメーターとしてはガイガーフレックスが最も広く使われております。そのほか粉末法カメラ、連続高温カメラ、ラウエカメラ、回転結晶法カメラ、バックカメラ、ワイセンベルグカメラ、積分カメラ、ケンビカメラ、マイクロカメラなどのすぐれた各種X線カメラをも製作しております。

理 学 電 機 株 式 会 社

本 社 東京都千代田区神田台所町 8 TEL 東京 (291) 7401 (代表)
関西出張所 大阪市西区土佐堀通 2-8 TEL 大阪 44 3639, 3769

